

Charakterisierung evaneszenter Felder zur örtlich hochaufgelösten Fluoreszenzanregung

Vom Fachbereich Physik
der Technischen Universität Darmstadt
zur Erlangung des Grades
eines Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation von

Dipl.-Phys. Julia Hahn

aus Frankfurt am Main

Referent: Prof. Dr. T. Tschudi
Korreferent: Prof. Dr. T. Halfmann

Tag der Einreichung: 26.05.2008
Tag der Prüfung: 18.06.2008

Darmstadt 2008
D17

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Theoretische Beschreibung evaneszenter Felder	7
2.1	Optische Nahfelder und evaneszente Felder	7
2.2	Innere Totalreflexion	10
2.2.1	Frustrierte Totalreflexion	14
2.3	Moden in Lichtwellenleitern	17
3	Numerische Simulation	20
3.1	Theoretische Grundlage und numerisches Verfahren	21
3.2	Brechungsindex und geführte Moden	23
3.3	Einfluss einer hochbrechenden dielektrischen Beschichtung . .	25
3.3.1	Einfluss der Beschichtungsdicke	25
3.3.2	Einfluss des Brechungsindex der Beschichtung	30
3.4	Einfluss verschiedener Deckmedien auf das evaneszente Feld .	32
3.5	Gültigkeit und Grenzen der Berechnungen	35
4	Herstellung der Wellenleiter	37
4.1	Herstellung der Chrommasken	37
4.2	Eindiffusion des Titans in die LiNbO ₃ -Kristalle	39
4.3	Qualitätskontrolle des Herstellungsprozesses	42
4.3.1	Rasterkraftmikroskopische Untersuchung der Oberfläche	42
4.3.2	Profil der geführten Moden an der Endfläche	45
4.4	Fasereinkopplung	47
5	Experimentelle Charakterisierung der evaneszenten Felder mit einem optischen Rasternahfeldmikroskop (SNOM)	49
5.1	Funktionsweise und Techniken des SNOM	50
5.2	Experimenteller Aufbau des SNOM	55
5.2.1	Signalwege	57
5.2.2	Mechanik / Bewegung	58

5.2.3	Abstandsdetektion	60
5.2.4	Lichtdetektion	64
5.2.5	Ansteuerung, Datenerfassung und -auswertung	66
5.3	Systemcharakterisierung des Messinstruments	67
5.3.1	Resonanzverhalten	67
5.3.2	Amplituden- und Phasenverhalten beim Annähern an die Oberfläche	69
5.3.3	Höhenauflösung mit dem PID-Regler	71
5.3.4	Zeitliche Stabilität	72
5.3.5	Rauschunterdrückung des Photomultipliers	73
5.4	Messung der evaneszenten Felder	75
5.4.1	Höhenscan	76
5.4.2	Lateraler (1D-) Scan an der Oberfläche	78
5.4.3	2D-Scan	80
5.5	Zusammenfassende Diskussion der Messergebnisse	81
6	Fluoreszenzanregung durch evaneszente Felder	83
6.1	Prinzip	84
6.1.1	Mechanismus der Fluoreszenzanregung	85
6.1.2	Fluoreszenzemission aus dem Volumen	86
6.1.3	Detektion mit der Kamera	86
6.2	Experimenteller Aufbau	87
6.3	Konzentrationsmessung	90
6.4	Querschnitt	93
6.5	Tröpfchenevaporation	94
6.6	Fluoreszenzanregung in biologischen Systemen	96
6.7	Diskussion der Messergebnisse	99
7	Zusammenfassung und Ausblick	101
7.1	Zusammenfassung	101
7.2	Ausblick	104
	Summary	106
	Anhang A: Eigenschaften von Lithiumniobat	110
	Anhang B: Verwendete Fluoreszenzfarbstoffe und -filter	111
	Literatur	115
	Danksagung	123
	Lebenslauf	124
	Publikationsliste	125
	Eidesstattliche Erklärung	128

Kapitel 1

Einleitung

Aufgrund der Vielzahl von Anwendungsmöglichkeiten hat sich die Evaneszenzfeldsensorik in den letzten Jahrzehnten zu einem stark wachsenden Forschungsfeld entwickelt. Neben der am häufigsten verwendeten Technik der evaneszenten Fasersensorik [1–3] hat sich die Evaneszenzfeldsensorik mit integriert-optischen Bauelementen etabliert. Insbesondere für zahlreiche Anwendungen im Bereich der chemischen, biologischen oder medizinischen Sensorik hat sich diese als bevorzugtes Messverfahren durchgesetzt [4–6]. Die hierbei verwendeten integriert-optischen Bauelemente zeichnen sich im Allgemeinen durch geringe Verluste aus und erlauben höchst sensitive Messungen. Sie sind in einer Vielzahl von Materialien und Geometrien erhältlich, sind flexibel in der Handhabung und aufgrund der geringen Größe ist es möglich, mit ihnen ein Analyse-Labor in Chip-Größe („Lab-on-a-chip“) zu realisieren.

Insbesondere für biochemische Anwendungen ist die Anregung fluoreszenter Farbstoffe in sehr dünnen Grenzsichten durch evaneszente Felder eine häufig verwendete Technik. Die evaneszenten Felder werden üblicherweise entweder durch Totalreflexion oder in Wellenleitern erzeugt [7–9]. Die Beleuchtung und Anregung erfolgt hierbei in Schichtdicken in der Größenordnung von nur wenigen 10-100 nm. Die Auflösung dieses nahfeldoptischen Verfahrens unterliegt keiner beugungsbedingten Grenze, die mit dem Abbe’schen Beugungslimit vergleichbar ist und ist somit physikalisch nicht prinzipiell nach unten begrenzt.

Motiviert wurde die Arbeit zunächst durch ein interdisziplinäres Projekt im Rahmen des Graduiertenkollegs 1114 „Optische Messtechniken für die Charakterisierung von Transportprozessen an Grenzflächen“ der DFG. Zielsetzung hierbei war es, mittels evaneszenter Felder Fluoreszenzen von Farbstoffen anzuregen, die sich speziell an die Membran einer biologischen Zelle anlagern. Die Herausforderung bei dieser Aufgabenstellung liegt einer-

seits darin, eine hohe Ortsauflösung in der Tiefe zu gewährleisten, andererseits genügend Energie zur Fluoreszenzanregung bereit zu stellen, um ein für den Detektor ausreichend hohes Fluoreszenzsignal zu erhalten. Ein möglichst hoher Anteil der im Wellenleiter geführten Lichtintensität muss also in die Grenzschicht gelangen.

Eine häufig verwendete Möglichkeit zur Erhöhung der evaneszenten Feldintensität stellt die Erzeugung von Oberflächenplasmonenresonanzen (SPR, engl. für Surface Plasmon Resonance) durch eine metallische Beschichtung der wellenleitenden Struktur dar [10–12]. Hierbei dringt im Resonanzfall das evaneszente Feld der Plasmonen in das Deckmedium ein. Der Nachteil dieser Methode liegt in der Verschlechterung der Ortsauflösung, da das evaneszente Feld der Plasmonen eine höhere Eindringtiefe als das ursprüngliche evaneszente Feld der im Wellenleiter geführten Mode hat.

Um dies zu vermeiden, wird als alternativer Ansatz im Rahmen dieser Arbeit der Einfluss einer dünnen hochbrechenden dielektrischen Metalloxidschicht auf das evaneszente Feld an der Grenzfläche ausgenutzt und untersucht. Auch hierbei wird die Intensität im evaneszenten Anteil der geführten Mode im Deckmedium erhöht, allerdings bleibt im Gegensatz zu metallisch beschichteten Wellenleitern die extrem kurze Eindringtiefe der geführten Mode unverändert, womit die hohe Ortsauflösung erhalten bleibt. Dieser Ansatz wurde von Quigley et al. theoretisch vorgeschlagen und untersucht [13], er konnte im Rahmen dieser Arbeit erfolgreich experimentell umgesetzt und zum ersten Mal mit einem optischen Rasternahfeldmikroskop nachgewiesen werden.

Als Material für die Wellenleiter wurde Lithiumniobat (LiNbO_3) ausgewählt. Es ist hochbrechend ($n(\lambda = 532 \text{ nm}) \approx 2,23$), was zu einer geringen Eindringtiefe des evaneszenten Feldes in der Größenordnung von nur wenigen 10 nm führt. Weiterhin existieren etablierte Fertigungsmethoden verlustarmer wellenleitender Strukturen wie die der hier verwendeten Eindiffusion von Titanionen [14, 15]. Die Herstellung ist reproduzierbar, so dass die Feldverteilung der geführten Moden berechenbar in Abhängigkeit der Produktionsparameter ist. Umgekehrt ermöglicht dies ein Design der gewünschten Feldverteilung (und insbesondere des evaneszenten Feldes im Deckmedium) für eine spezifische Applikation.

Die im Rahmen der Arbeit durchgeführten Untersuchungen beschränken sich auf Streifenwellenleiter, wobei sie prinzipiell auf weitere Geometrien, wie beispielsweise Arrays, leicht erweiterbar sind.

Gliederung der Arbeit

Zunächst wird in Kapitel 2 eine theoretische Einführung in die der Arbeit zu Grunde liegenden physikalischen Effekte gegeben. Die Begriffe der Nahfeldoptik und des evaneszenten Feldes werden geklärt und die wesentlichen Aspekte an einfachen Beispielen wie der Totalreflexion am Glasprisma und einem planaren Wellenleiter verdeutlicht. Insbesondere wird auf den Begriff der Eindringtiefe eingegangen.

Im anschließenden Kapitel 3 werden die theoretischen Betrachtungen auf die tatsächlich verwendeten Strukturen, nämlich titaneindiffundierte Streifenwellenleiter in Lithiumniobat erweitert. Numerische Simulationen des Brechungsindexprofils sowie der im Wellenleiter geführten Moden und deren evaneszenten Felder werden diskutiert. Hierbei liegt der Schwerpunkt auf der Untersuchung der Eigenschaften des evaneszenten Feldes bei einer hochbrechenden dielektrischen Beschichtung der Wellenleiterstruktur. Die Berechnungen zeigen, dass durch die Beschichtung die Intensität des evaneszenten Feldes an der Grenzfläche auf das 50-fache erhöht werden kann, während die Eindringtiefe unverändert kurz bleibt.

In Kapitel 4 wird die Herstellung der wellenleitenden Strukturen beschrieben. Die Prozesse der Herstellung der Chrommasken am Institut für Angewandte Physik sowie die damit durchgeführte Produktion der Wellenleiter in Zusammenarbeit mit dem Institut für Physik und Physikalische Technologien der Technischen Universität Clausthal werden erläutert. Es werden Mechanismen der Qualitätskontrolle vorgestellt und der Einbau des bearbeiteten Substrats in ein integriert-optisches Bauelement beschrieben, das später in den Versuchsreihen verwendet wird.

Die Vermessung und Charakterisierung der evaneszenten Felder mit einem optischen Rasternahfeldmikroskop (SNOM) ist in Kapitel 5 dargelegt, was den Schwerpunkt der Arbeit darstellt. Zunächst wird der Aufbau der Messapparatur als Erweiterung eines bereits bestehenden Rasterkraftmikroskops beschrieben und dieser charakterisiert. Mit diesem System war es möglich, die evaneszenten Felder der in den Wellenleitern geführten Moden zu vermessen und zu charakterisieren. Es wurden laterale Scans an der Oberfläche durchgeführt und des weiteren die Eindringtiefe bestimmt. Hierbei konnte die Intensitätserhöhung an der Grenzschicht in beschichteten Bereichen des Wellenleiters gegenüber unbeschichteten bei extrem kurzen Eindringtiefen zum ersten Mal erfolgreich mit der SNOM-Technik nachgewiesen werden [16, 17].

Als zweiter Hauptteil der Arbeit schließt Kapitel 6 an, in dem die interdisziplinäre Einsetzbarkeit des zuvor charakterisierten Wellenleiterbauelements zur hochaufgelösten Fluoreszenzanregung an Hand von Anwendungsbeispielen aus Strömungslehre und Biologie demonstriert wird. Dazu wird das Wellenleiterbauelement in ein Mikroskopsystem integriert, das zur Detektion des durch das evaneszente Feld in der Grenzschicht angeregten Fluoreszenzsignals dient. Anhand von charakteristischen Beispielsmessungen werden die Stärken und Schwächen des Systems diskutiert, wobei es mit bestehenden Techniken der Nahfeldfluoreszenzanregung TIRFM (engl. für Total Internal Reflection Fluorescence Microscopy) in Vergleich gesetzt wird.

Die Arbeit schließt in Kapitel 7 mit einer zusammenfassenden Diskussion der erzielten Ergebnisse, wobei ein Ausblick auf potentielle weitere aufbauende Forschungsarbeiten und interdisziplinäre Anwendungen örtlich hochaufgelöster evaneszenter Fluoreszenzanregung gegeben wird.

Kapitel 2

Theoretische Beschreibung evaneszenter Felder

In diesem Abschnitt werden die theoretischen Grundlagen für die in der Arbeit untersuchten Phänomene der Nahfeldoptik zusammengetragen und der Begriff des evaneszenten Feldes definiert. Als Einführung in die Thematik wird dessen Auftreten am Beispiel der Totalreflektion diskutiert. Hierbei wird auf die wesentlichen Effekte und Charakteristika des evaneszenten Feldes eingegangen. Ebenfalls wird in diesem Kontext der Spezialfall der frustrierten Totalreflexion behandelt, da dieser das Funktionsprinzip des für die Messungen der evaneszenten Felder verwendeten optischen Rasternahfeldmikroskops (vgl. Kap. 5) darstellt. Als zweites einführendes Beispiel wird die Feldverteilung und das Auftreten des evaneszenten Feldes in einer einfachen Wellenleitergeometrie berechnet. Weiterführende detaillierte Betrachtungen der evaneszenten Felder in den tatsächlich verwendeten Wellenleitergeometrien werden in Kap. 3 durchgeführt.

2.1 Optische Nahfelder und evaneszente Felder

Der Begriff „Nahfeldoptik“ bezieht sich allgemein auf die Anregung oder Propagation hochfrequenter elektromagnetischer Felder in Strukturen, deren Ausdehnungen klein gegenüber der verwendeten Wellenlänge sind [18]. Paesler erweitert diese Definition noch durch Interaktion des Lichts: „Nahfeldoptik bezeichnet den Bereich der Optik, der sich auf Konfigurationen bezieht, die vom Durchgang von Licht von, zu, durch oder nahe eines Elements mit Subwellenlängeneigenschaften abhängen; und das Koppeln von diesem Licht in ein zweites Element, das sich in einer Distanz kleiner als die Wellenlänge vom ersten befindet“ [19].

Der Begriff „evaneszent“ stammt vom Lateinischen „evanescere“ ab, das übersetzt „sich verflüchtigen“ oder „verschwinden“ bedeutet. Bezogen auf elektromagnetische Felder handelt es sich bei „evaneszenten Feldern“ um den Anteil eines elektromagnetischen Feldes, der mit zunehmender Entfernung von einer Grenzfläche sehr schnell „verschwindet“, d.h. die Feldstärke nimmt sehr rasch ab. Im Gegensatz zu anderen mit dem Abstand zur Quelle schwächer werdenden elektromagnetischen Feldern (wie z.B. Dipolstrahlung), wird das evaneszente Feld nicht von der Quelle abgestrahlt sondern ist immer an eine Grenzfläche gebunden. Ein weiteres Charakteristikum, das aus den folgenden Betrachtungen hervorgeht, ist die exponentielle Abschwächung der Feldstärke.

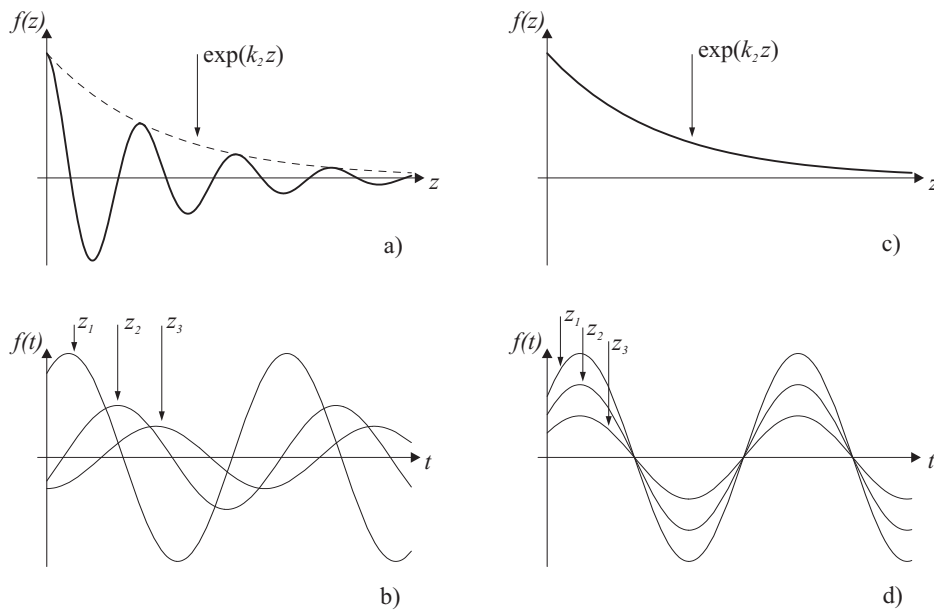


Abbildung 2.1: Gedämpfte Welle: a) als Funktion des Ortes z zur Zeit $t = 0$, b) als Funktion von t an den Orten $z_1 < z_2 < z_3$; Evaneszente harmonische Welle: c) als Funktion des Ortes z zur Zeit $t = 0$, d) als Funktion von t an den Orten $z_1 < z_2 < z_3$.

Die mathematische Formulierung des evaneszenten Feldes [20] wird am Beispiel einer ebenen Welle gegeben:

$$f(z, t) = a \exp [i(k_1 + i k_2)z - i\omega t] \quad (2.1)$$

$$= a \exp (-k_2 z) \exp [i(k_1 z - \omega t)] \quad (2.2)$$

mit der Ortskoordinate z , der komplexen Wellenzahl $k \equiv k_1 + ik_2 = 2\pi/\lambda$ (λ : Wellenlänge) und der Kreisfrequenz $\omega = 2\pi\nu$ (ν : Frequenz).

Es können drei Fälle für die Wellenzahl k unterschieden werden: 1. rein reell, 2. komplex und 3. rein imaginär. Die jeweiligen Wellen werden als propagierend, gedämpft und evaneszent bezeichnet, wobei die beiden letzten in Ort- und Zeitabhängigkeit in Abbildung 2.1 dargestellt sind.

Eine evaneszente Welle liegt also vor, wenn die Wellenzahl k rein imaginär wird. Somit wird aus der Welle eine Exponentialfunktion, die nur noch in ihrer Zeitkomponente t einen harmonischen Schwingungszustand aufweist. Wie in der Graphik zu erkennen ist, besitzt auch die gedämpfte Welle ein exponentielles Abklingverhalten als Einhüllende, jedoch sind hier sowohl die Ortskoordinate z wie auch die Zeitkomponente t harmonische Wellenfunktionen, d.h. die Welle propagiert.

Obwohl der Hauptanteil der evaneszenten Felder in der Regel auf den Bereich des Nahfeldes beschränkt ist (im Falle von sichtbarem Licht sind das einige 100 nm), soll an dieser Stelle noch einmal hervorgehoben werden, dass die beiden Begriffe nicht gleichzusetzen sind. Der Begriff des Nahfeldes bezieht sich zunächst immer nur auf den geometrischen Bereich, der Begriff des evaneszenten Feldes implementiert hingegen spezielle physikalische Eigenschaften der grenzflächengebundenen Wellen mit exponentiell abklingendem Verhalten [21].

Beispiele für das Auftreten evaneszenter Wellen in verschiedensten optischen Systemen sind die innere Totalreflexion einer ebenen Welle, die Beugung eines Strahls an einer Sub- λ -Apertur, die Beugung an einem Sub- λ -Gitter oder das evaneszentes Feld einer geführten Mode in einem Wellenleiter. Von ihnen werden in den folgenden beiden Abschnitten das evaneszente Feld bei innerer Totalreflexion und das einer geführten Mode in einem Lichtwellenleiter detaillierter betrachtet. Ebenfalls wird auf die frustrierte Totalreflexion eingegangen, deren Effekt zur Messung des evaneszenten Feldes ausgenutzt wird.

2.2 Innere Totalreflexion

Die Brechung einer Lichtwelle von einem optisch dichteren dielektrischen Medium (1) in ein dünneres dielektrisches Medium (2) wird durch das Snellius'sche Brechungsgesetz beschrieben:

$$n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2 \quad (2.3)$$

mit den Brechungsindizes $n_{1,2}$ und den Ein- bzw. Ausfallswinkeln $\theta_{1,2}$. Für Einfallswinkel $\theta_1 \geq \theta_c = \sin^{-1}(n_2/n_1)$ kommt es zur Totalreflexion, wobei θ_c als kritischer oder Grenzwinkel der Totalreflexion bezeichnet wird.

Bereits Isaac Newton fand um das Jahr 1700 heraus, dass an der Stelle der Totalreflexion ein Lichtfeld im dünneren Medium 2 existiert [22]. Dieses nur in unmittelbarer Nähe der Grenzfläche existente Licht wurde später als evaneszentes Feld bezeichnet, das sich aus den Maxwell-Gleichungen herleiten lässt:

In Abb. 2.2 ist die Totalreflexion einer einfallenden ebenen Welle mit den elektrischen Vektorkomponenten \mathbf{E}^i an der Grenzschicht $z = 0$ (in der Einfallsebene $y = 0$) skizziert. Die Wellenvektoren für die einfallende, reflektierte und transmittierte Welle seien jeweils \mathbf{k}^i , \mathbf{k}^r und \mathbf{k}^t . Zur Berücksichtigung der Polarisation des Feldes wird es in zwei Vektoren aufgeteilt, die die jeweilige Polarisation repräsentieren, wobei „p“ für parallel und „s“ für senkrecht steht. Daraus folgen für die beiden Polarisationen die elektrischen Feldvektoren

$$\mathbf{E}_p = E_x \mathbf{e}_x + E_z \mathbf{e}_z \quad (2.4)$$

$$\mathbf{E}_s = E_y \mathbf{e}_y. \quad (2.5)$$

Die p- und s-Polarisationen werden auch als transversal magnetische (TM) und transversal elektrische (TE) Polarisationen bezeichnet, da das magnetische bzw. elektrische Feld jeweils senkrecht auf der Einfallsebene der Welle steht. Die folgenden Ausführungen beziehen sich auf das elektrische Feld, die Gleichungen für das magnetische können in analoger Weise hergeleitet werden.

Die Komponenten des elektrischen Felds in der Ebene $z = 0$ sind gegeben durch (wobei zur vollständigen mathematischen Beschreibung zusätzlich die Faktoren für die Zeitabhängigkeit $\exp(i\omega t)$ und die x-Abhängigkeit $\exp(-ixn_1(\omega/c) \sin \theta)$ berücksichtigt werden müssen) [23]:

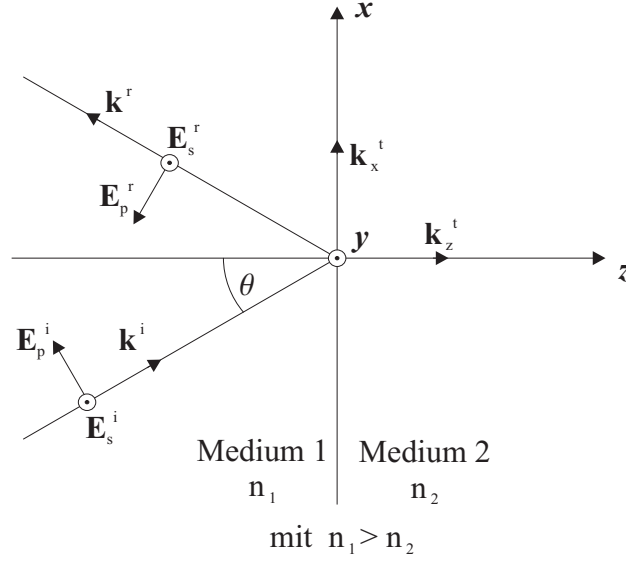


Abbildung 2.2: Koordinatensystem bei Totalreflexion. \mathbf{E}_p und \mathbf{E}_s repräsentieren das elektrische Feld der p- und s-Polarisation; \mathbf{k}^i , \mathbf{k}^r und \mathbf{k}^t sind die Wellenvektoren des einfallenden, reflektierten und transmittierten Strahls.

$$E_x(z=0) = \frac{(2 \cos \theta)(\sin^2 \theta - n^2)^{1/2}}{(n^4 \cos^2 \theta + \sin^2 \theta - n^2)} E_p^i \exp(-i(\delta_p + \pi/2)), \quad (2.6)$$

$$E_y(z=0) = \frac{2 \cos \theta}{(1 - n^2)^{1/2}} E_s^i \exp(-i\delta_s), \quad (2.7)$$

$$E_z(z=0) = \frac{2 \cos \theta \sin^2 \theta}{(n^4 \cos^2 \theta + \sin^2 \theta - n^2)} E_p^i \exp(-i\delta_p), \quad (2.8)$$

mit $n = n_2/n_1$ und der Amplitude des einfallenden elektrischen Feldes E_p^i bzw. E_s^i . Hierbei sind δ_p und δ_s Lösungen der Gleichungen

$$\tan \delta_p = \frac{(\sin^2 \theta - n^2)^{1/2}}{n^2 \cos \theta}, \quad (2.9)$$

$$\tan \delta_s = \frac{(\sin^2 \theta - n^2)^{1/2}}{\cos \theta}. \quad (2.10)$$

Die Intensität des elektrischen Feldes an der Stelle $z = 0$ ist somit von den beiden Brechungsindizes n_1 und n_2 , von der Polarisation und vom Einfallswinkel θ abhängig, wobei mit Annäherung von $\theta = \pi/2$ an $\theta = \theta_c$ die Stärke des elektrischen Feldes wächst.

Für die z -Abhängigkeit des evaneszenten Feldes im Medium 2 ($z > 0$) können für die p- und s-Polarisation folgende Ausdrücke abgeleitet werden:

$$\mathbf{E}_p^t(z) = E_p^i \frac{(2 \cos \theta) \exp(-z/d_p)}{n^2 \cos \theta + i(\sin^2 \theta - n^2)^{1/2}} [-i(\sin^2 \theta - n^2)^{1/2} \mathbf{e}_x + \sin \theta \mathbf{e}_z] \quad (2.11)$$

und

$$\mathbf{E}_s^t(z) = E_s^i \frac{(2 \cos \theta) \exp(-z/d_p)}{\cos \theta + i(\sin^2 \theta - n^2)^{1/2}} \mathbf{e}_y = E_s^t \mathbf{e}_y. \quad (2.12)$$

Eine zusammenfassende Darstellung des evaneszenten Feldes ergibt sich somit als

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{p,s}^t &= \mathbf{E}_{p,s}^i \exp[i(\omega t - \mathbf{k}^t \cdot \mathbf{r})] \\ &= \mathbf{E}_{p,s}^i \exp[i(\omega t - k_x x)] \exp(-z/d_p). \end{aligned} \quad (2.13)$$

Aus diesen Formeln ist erkennbar, dass die transmittierte Welle parallel zur Oberfläche propagiert und senkrecht dazu als evaneszentes Feld exponentiell abklingt. Die Information der Ausgangswelle sind im komplexen Phasenfaktor vorhanden.

Eindringtiefe

Die charakteristische Größe, die bei der abklingenden Welle auftritt, ist die Eindringtiefe d_p („Depth of Penetration“). Sie gibt an, nach welcher Wegstrecke z das evaneszente Feld auf $1/e$ ($\approx 37\%$) seines ursprünglichen Wertes abgefallen ist. Die Eindringtiefe d_p ist abhängig von der Wellenlänge λ , den beiden Brechungsindizes und dem Einfallswinkel und ist gegeben durch

$$d_p = \frac{\lambda}{2\pi \sqrt{n_1^2 \sin^2 \theta - n_2^2}}. \quad (2.14)$$

Da in den späteren Experimenten die Intensitäten evaneszenter Felder gemessen werden, soll an dieser Stelle noch die Eindringtiefe $d_{p,I}$ der evaneszenten Feldintensität eingeführt werden, nach der die Intensität I^t auf den Wert $1/e$ der ursprünglichen Intensität I^i abgefallen ist

$$I^t = I^i \cdot \exp(-z/d_{p,I}). \quad (2.15)$$

Energiefluss

Die Energieflussdichte des elektromagnetischen Feldes ist gegeben durch den Poynting-Vektor \mathbf{S} , für den gilt

$$\mathbf{S} = \mathbf{E} \times \mathbf{H} \quad (2.16)$$

Somit gilt für die einzelnen Komponenten (im Fall der TE Polarisierung):

$$S_{sx}^t = \frac{1}{\mu_0} \frac{n_1}{c} (E_s^t)^2 \sin\theta \cdot \cos^2 \left(\omega t - x \frac{n_1 \omega}{c} \sin\theta + \delta_s \right) \quad (2.17)$$

$$S_{sy}^t = 0 \quad (2.18)$$

$$S_{sz}^t = \frac{1}{\mu_0} \frac{n_1}{c} (\sin^2\theta - n^2)^{1/2} (E_s^t)^2 \cos^2 \left(\omega t - x \frac{n_1 \omega}{c} \sin\theta + \delta_s \right) \quad (2.19)$$

Der Energiefluss in y-Richtung ist immer 0. In z-Richtung, also in Richtung des optisch dünneren Mediums, ergibt sich ein von Null verschiedener Anteil. Integriert man diesen über ein Viertel der Schwingungsdauer, so ergibt sich:

$$\overline{S_{sz}^t} = \int_0^{T/4} S_{sz}^t dt \quad (2.20)$$

$$= -(E_s^t)^2 \frac{1}{\mu_0} \frac{n_1}{c} (\sin^2\theta - n^2)^{1/2} \cos^2 \left(\omega t - x \frac{n_1 \omega}{c} \sin\theta + \delta_s \right) \quad (2.21)$$

Für die Integration über die nächste Viertelperiode ändert sich das Vorzeichen des Ergebnisses. Somit ist Energiefluss im zeitlichen Mittel 0, obwohl die evaneszente Welle ins zweite Medium eindringt.

Goos-Hänchen-Verschiebung

Aus den obigen Ausführungen wird deutlich, dass die Intensitätsverteilung allein nicht zur Charakterisierung evaneszenter Felder ausreicht, sondern dass intrinsische Eigenschaften der Wellen berücksichtigt werden müssen. Diese und die darauf basierenden Effekte wurden in der zweiten Hälfte des 20. Jahrhunderts intensiv untersucht [24–29].

Der bekannteste dieser Effekte, der an der Stelle der Totalreflexion auftritt, ist die Goos-Hänchen-Verschiebung. Dies ist eine polarisationsabhängige laterale Verschiebung des reflektierten Lichtstrahls¹, das heißt der Ausgangspunkt für den reflektierten Strahl an der reflektierenden Oberfläche

¹Die Transversalverschiebung des totalreflektierten Strahl wird als Imbert-Fedorov-Verschiebung bezeichnet [23].

stimmt nicht mit dem Auftreffpunkt des einfallenden Strahles überein, sondern sie sind zueinander verschoben. Abbildung 2.3 verdeutlicht diesen Effekt.

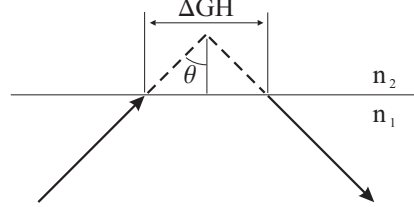


Abbildung 2.3: Goos-Hänchen-Verschiebung: laterale Verschiebung des totalreflektierten Strahls um ΔGH

Die Verschiebung des elektrischen Feldes ΔGH ist gegeben durch [30]

$$\Delta GH = \left(\frac{\lambda}{\pi n_1} \right) \frac{\tan \theta_c}{\sqrt{\sin^2 \theta - \sin^2 \theta_c}} \quad (2.22)$$

$$= |S'_{sz} \cdot \sin \theta / \alpha| \quad (2.23)$$

mit dem Absorptionskoeffizienten α des Medium 1. Die Verschiebung im geometrischen Modell ist proportional zum Energiefluss S'_{sz} von Medium 1 ins Medium 2. Somit hängt sie direkt über den Energiefluss mit dem evaneszenten Feld zusammen.

Die Existenz des evaneszenten Feldes in der wellenoptischen Beschreibung wird folglich in der geometrischen Beschreibung durch die Goos-Hänchen-Verschiebung des totalreflektierten Strahls berücksichtigt.

2.2.1 Frustrierte Totalreflexion

Wird in das evaneszente Feld nahe der Oberfläche, an der Totalreflexion stattfindet, ein drittes Medium mit $n_3 > n_2$ gebracht, so wird die Totalreflexion „gestört“ und ein Teil der einfallenden Welle kann im Medium 3 weiterpropagieren (siehe Abb. 2.4). Diese Störung verleiht dem Effekt seinen Namen, der „frustrierte Totalreflexion“ genannt wird. Im Photonenbild des Lichts wird, in Anlehnung an den Tunneleffekt, bei dem Teilchen vom Medium 1 durch die „Potentialbarriere“ des Mediums 2 ins Medium 3 tunnelt, die frustrierte Totalreflexion auch oft als „optisches Tunneln“ bezeichnet.

Die Transmission vom Medium 1 in das Medium 3 zwischen zwei ebenen Flächen, die durch den Abstand z getrennt sind, wurde z.B. von Court und von Willisen (1964) [31] eingehend beschrieben und untersucht. Für den Fall

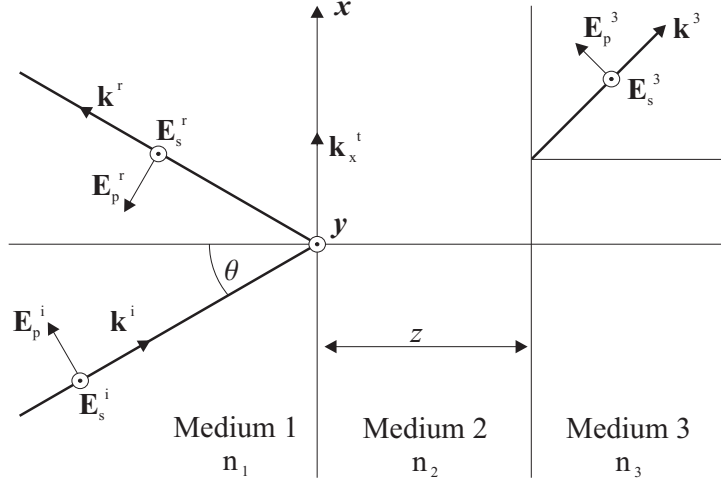


Abbildung 2.4: Frustrierte Totalreflexion

gleicher Brechungsindizes in den Medien 1 und 3 ($n_1 = n_3$) führt dies zu dem folgenden Betrag des elektrischen Feld $\|E_{p,s}^3\|$ im Medium 3 für die p- bzw. s-Polarisation:

$$\|E_{p,s}^3\| = T(z) \|E_{p,s}^i\| \quad (2.24)$$

mit dem Transmissionskoeffizienten

$$T(z) = (\cosh^2(z/d_p) + \cot^2(2\phi_{p,s}) \sinh^2(z/d_p))^{-1/2}. \quad (2.25)$$

Hierbei sind

$$\phi_p = \arctan \left[\frac{n_1 (n_1^2 \sin^2 \theta - n_2^2)^{1/2}}{n_2^2 \cos \theta} \right], \quad (2.26)$$

$$\phi_s = \arctan \left[\frac{(n_1^2 \sin^2 \theta - n_2^2)^{1/2}}{n_1 \cos \theta} \right] \quad (2.27)$$

für die p- und s-Polarisation.

Abbildung 2.5 zeigt die Feldintensität $I(z) = \|E_{p,s}^3(z)\|^2$ im Medium 3 aufgetragen gegen den Abstand z der beiden Oberflächen für verschiedene Einfallswinkel θ . Anzumerken ist dabei, dass für große Winkel die Intensität für s-polarisiertes größer als für p-polarisiertes Licht ist. Für kleine Winkel θ ist das Verhalten umgekehrt.

Bisher wurde nur der Fall betrachtet, dass zwei unendlich ausgedehnte parallele Oberflächen vorliegen. Für das SNOM wird jedoch zum Auskoppeln des Lichts eine verjüngte Glasfaser mit einer feinen Spitze benutzt, wie

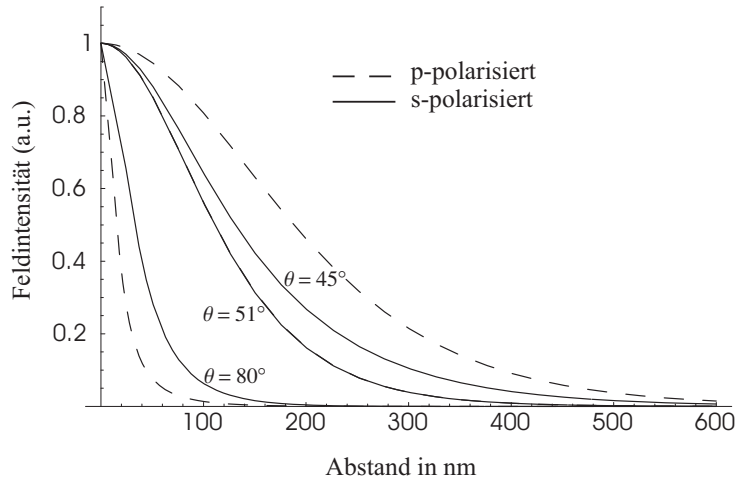


Abbildung 2.5: Feldintensität bei frustrierter Totalreflexion in Medium 3 ($n_1 = n_3$) berechnet als Funktion des Abstands für p- und s-Polarisation. Für $\theta = 51^\circ$ sind die Intensitäten beider Polarisationen gleich. Parameter: $\lambda = 532 \text{ nm}$, $n_1 = n_3 = 1,519$, $n_2 = 1,0$, $\theta_c = 41,17^\circ$.

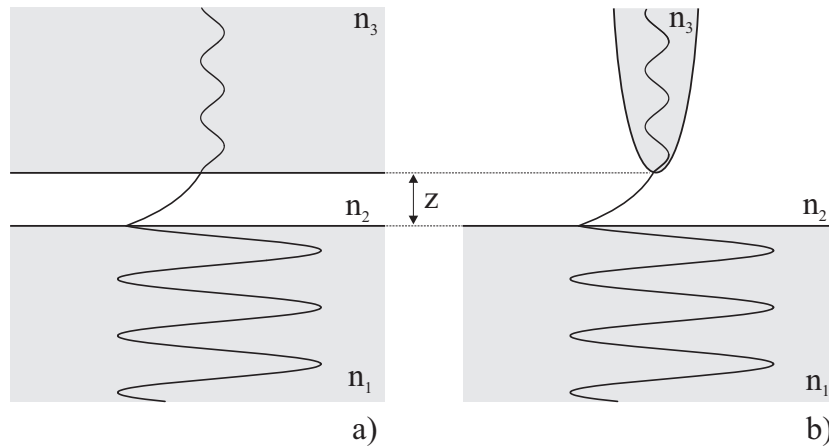


Abbildung 2.6: Für a) eine planare Fläche und b) eine Faserspitze, die die Totalreflexion „frustrieren“, ist die propagierende und evaneszente Natur der elektromagnetischen Feldkomponenten schematisch in den Medien dargestellt.

in Abb. 2.6 skizziert. Die Unterschiede in der Kopplungseffizienz, die zwischen einer flachen Oberfläche und einer spitzen Faser vorliegen, haben Salomon et al. theoretisch und experimentell untersucht [32]. Um die Intensität des ausgekoppelten Feldes zu berechnen, muss die Stärke des evaneszenten Feldes über die Oberfläche integriert werden. Es zeigt sich, dass sich für einen kleiner werdenden Spitzenradius die Feldintensität immer mehr einer Exponentialfunktion annähert [32]. Zudem sinkt die Gesamtintensität, da auch die Kopplungsfläche kleiner wird.

2.3 Moden in Lichtwellenleitern

Im Folgenden wird erläutert, wie das Konzept der (mehrfachen) Totalreflexion auf wellenleitende Strukturen erweitert werden kann. Um die Feldverteilung der im Wellenleiter propagierenden Moden berechnen zu können, muss auf das Konzept der Wellenoptik übergegangen werden. Am einfachen Beispiel eines planaren Wellenleiters, der aus drei dielektrischen Schichten aufgebaut ist, wird der Übergang von der geometrischen Optik zur Wellenoptik erläutert. Aus der Analogie zur Totalreflexion begründet sich die Existenz der evaneszenten Felder mit den analogen Eigenschaften.

Dazu wird ein planarer dielektrischer Wellenleiter betrachtet, der aus drei dielektrischen Schichten aufgebaut ist, die in der x-y-Ebene unendlich ausgeht sind. Die mittlere Schicht (1) hat die Dicke a und den höchsten Brechungsindex. Ist die Bedingung für Totalreflexion an beiden Grenzschichten (2,3) erfüllt, kann der Strahl geführt werden kann (vgl. Abb. 2.7).

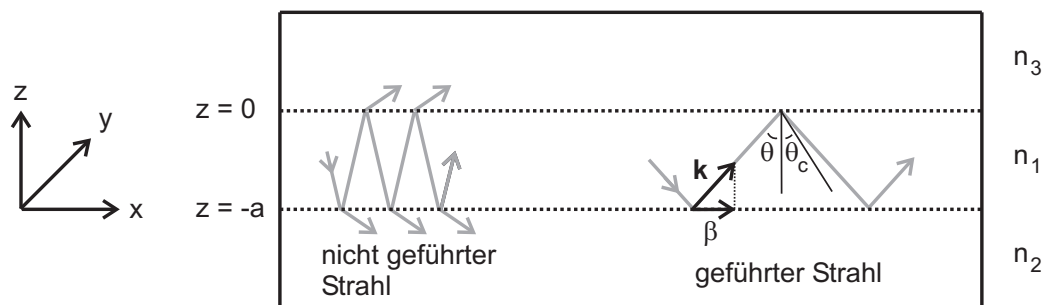


Abbildung 2.7: Planarer Wellenleiter mit Koordinatenachsen

Aus der Lösung der Maxwell-Gleichungen mit den gegebenen Randbedingungen (Stetigkeit der tangentialen Komponenten des elektrischen und magnetischen Feldes an den Grenzflächen der Medien $z = 0$ und $z = -a$) [6, 23, 33] erhält man die im Wellenleiter geführten Moden.

Moden sind definiert als Felder, die die gleiche Querverteilung und Polarisation in allen Entfernungen entlang der Wellenleiterachse beibehalten [33]. Diese existieren für beide Polarisationen: die transversal elektrische (TE) und die transversal magnetische (TM) Mode. Bei der TE Mode ist das elektrische Feld senkrecht zur Fläche, in der sich der \mathbf{k} -Vektor bewegt, orientiert und somit $E_x = E_z = 0$ und $H_y = 0$.

Für die TE Moden ergeben sich folgende Lösungen aus den Maxwell-Gleichungen:

$$E_y(z) = \begin{cases} A \exp(-q_3 z) & \text{für } z \geq 0, \\ A \cos q_1 z + B \sin q_1 z & \text{für } 0 \geq z \geq -a, \\ (A \cos a q_1 - B \sin a q_1) \exp[q_2(z + a)] & \text{für } -a \geq z, \end{cases} \quad (2.28)$$

und

$$H_z(z) = \frac{-i}{\omega \mu_0} \begin{cases} -q_3 A \exp(-q_3 z) & \text{für } z \geq 0, \\ -q_1 (-A \sin q_1 z + B \cos q_1 z) & \text{für } 0 \geq z \geq -a, \\ q_2 (A \cos a q_1 - B \sin a q_1) \exp[q_2(z + a)] & \text{für } -a \geq z. \end{cases} \quad (2.29)$$

$H_z(z)$ ist proportional zum elektrischen Feld: $H_z(z) = \frac{-\beta}{\mu_0 \omega} E_y(z)$.

Hierbei sind die $q_{1,2,3}$ wie folgt mit der Propagationskonstanten β verbunden, wobei $k^2 = \omega^2 \mu_0 \epsilon_0$:

$$\begin{aligned} q_1^2 &= n_1^2 k^2 - \beta^2, \\ q_2^2 &= \beta^2 - n_2^2 k^2, \\ q_3^2 &= \beta^2 - n_3^2 k^2. \end{aligned} \quad (2.30)$$

Zusätzlich folgt aus den Stetigkeitsbedingungen noch die Eigenwertgleichung

$$\tan(q_1 a) = \frac{q_1(q_2 + q_3)}{q_1^2 - q_2 q_3}, \quad (2.31)$$

um die Moden vollständig bestimmen zu können.

Für die TM Mode gilt $H_x = H_z = 0$ und $E_y = 0$, die Moden können auf analoge Weise ausgedrückt werden [23].

Wie aus den obigen Gleichungen zu erkennen ist, ist das Feld im Wellenleiter (Medium 1), im Falle optischer Fasern auch „Kern“ genannt, eine Sinus- bzw. Kosinusfunktion. Außerhalb in den Medien 2 und 3, dem sogenannten „Cladding“, fällt die Feldstärke exponentiell ab und lässt die Ähnlichkeit zu

dem Fall der Totalreflexion aus Abschnitt 2.2 erkennen. Das auftretende evaneszente Feld ist durch die Zerfallsrate $q_{2,3}$, auch als Abschwächungsfaktor bekannt, charakterisiert und spielt die gleiche Rolle wie die reziproke Eindringtiefe d_p bei der Totalreflexion.

Bisher wurden zweidimensionale Wellenleiter diskutiert, bei denen die x-y-Ebene unendlich ausgedehnt ist. Eindimensionale (Streifen-) Wellenleiter können analog betrachtet werden. Hier ist das Medium 1 in y-Richtung von einem anderen Medium mit kleinerem Brechungsindex als n_1 umgeben (wie in z-Richtung), was dazu führt, dass neue Randbedingungen zur Lösung der Maxwell-Gleichungen hinzukommen und sich auch in y-Richtung Modenstrukturen ausbilden.

Für komplexere Strukturen, wie die verwendeten durch Eindiffusion entstandenen Brechungsindexprofile, lassen sich die Lösungen der Maxwell-Gleichungen nur noch numerisch berechnen. Diese Berechnungen wurden mit dem in Kap. 3 beschriebenen Verfahren durchgeführt. Für solche komplexen dielektrischen Strukturen existieren in der Regel auch keine reinen TE- bzw. TM-Moden mehr. Die Moden sind vielmehr zusammengesetzte TEM-Moden, die je nach Ausrichtung der Hauptkomponente des elektrischen Feldes als Quasi-TE-Moden bzw. Quasi-TM-Moden bezeichnet werden [34].

Kapitel 3

Numerische Simulation

Im Folgenden werden die Brechungsindexverteilung sowie die in den Wellenleitern geführten Moden numerisch berechnet. Insbesondere wird auf die Eigenschaften des evaneszenten Feldes im Bereich der Grenzsicht von Wellenleiter zum umgebenden Medium eingegangen. Aufgrund dieser Berechnungen wurden die Parameter für die Herstellung der Wellenleiter gewählt, wie sie in Kap. 4 beschrieben ist.

Zunächst wird das numerische Verfahren erläutert, auf dem die Simulationen basieren. Als Grundlage für die Berechnung der geführten Moden dient die Berechnung des Brechungsindexprofils im LiNbO_3 -Kristall, in dem durch die Eindiffusion von Titan wellenleitende Strukturen erzeugt wurden. Diese und die weiteren Simulationen werden beispielhaft mit den Parametern der in den Experimenten verwendeten Wellenleiterstrukturen durchgeführt. Auf dem Brechungsindexprofil basierend werden die im Wellenleiter geführten Moden berechnet. Der darauf folgende Abschnitt beschäftigt sich mit dem Einfluss der Dicke und des Brechungsindex einer hochbrechenden dielektrischen Metalloxidbeschichtung auf die Form der geführten Mode und insbesondere auf die dadurch hervorgerufene Erhöhung der evaneszenten Feldstärke E_0 (und folglich auch -intensität I_0) an der Grenzsicht. Ebenfalls werden die Einflüsse von Schichtdicke und Brechungsindex der Schicht diskutiert. Da im Abschnitt 6 verschiedene Deckmedien verwendet werden, wird anschließend der Verlauf des evaneszenten Feldes in Abhängigkeit von deren Brechungsindex berechnet. Schließlich werden die numerischen Ergebnisse in Hinblick auf ihre Grenzen und Gültigkeit diskutiert.

3.1 Theoretische Grundlage und numerisches Verfahren

Zur Berechnung wurde ein im Institut für Physik und Physikalische Technologien der Universität Clausthal entwickelter Algorithmus verwendet, der im Rahmen meiner Arbeit auf die spezifischen Fragestellungen angepasst wurde. Als Grundlage für die Berechnungen des Brechungsindexprofils dienen die von Vollmer et al. und Hukriede et al. [35,36] vorgeschlagenen Methoden, die im Folgenden kurz skizziert werden:

Zunächst wird das Brechungsindexprofil der wellenleitenden Struktur berechnet, das durch die Eindiffusion des Titans in den LiNbO_3 -Kristall erzeugt wurde. Zugrunde gelegt wird die Diffusionsgleichung für eine endliche Quelle (hier der $\tau = 10$ nm hohe Titanstreifen), woraus ein gaussförmiges Diffusionsprofil im Kristall entsteht. Die Konzentration der Titanionen in Abhängigkeit der Tiefe $-z$ ist dann gegeben durch:

$$c(-z) = c(0) \cdot e^{-(z/b_c)^2} \quad (3.1)$$

Dabei bezeichnet $c(0)$ die Konzentration an der Grenzfläche, b_c die Eindringtiefe. Beide hängen von der Diffusionszeit t ab:

$$c(0) = \frac{a\tau}{\sqrt{\pi Dt}} \quad \text{und} \quad b_c = 2\sqrt{Dt}$$

Hierbei ist $a = 5,64 \cdot 10^{28} \text{m}^{-3}$ die Atomdichte des Titans und D die Diffusionskonstante, für die von Vollmer et. al. [35] der Wert $D = 4,6 \cdot 10^{-17} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ermittelt wurde. Legt man eine lokale Beziehung zwischen Brechungsindexveränderung und Konzentration der Titanionen zugrunde, resultiert aus dem gaussförmigen Konzentrationsprofil ein gaussförmiges Brechungsindexprofil mit:

$$\Delta n_e = (c/c_e)^{\eta_e} \quad \text{und} \quad \Delta n_o = (c/c_o)^{\eta_o}$$

Für Gaußprofile bedeutet dies, dass der Brechungsindexunterschied für den außerordentlichen Strahl:

$$\Delta n_e(0) = (c(0)/c_e)^{\eta_e} \quad \text{und} \quad b_e^2 = b_c^2/\eta_e$$

und für den ordentlichen Strahl

$$\Delta n_o(0) = (c(0)/c_o)^{\eta_o} \quad \text{und} \quad b_o^2 = b_c^2/\eta_o$$

beträgt. Für die Parameter wurden folgende Werte ermittelt [35]:

$$c_e = 1,3 \cdot 10^{29} m^{-3}, \quad c_o = 2,9 \cdot 10^{30} m^{-3}, \quad \eta_e = 0,88, \quad \eta_o = 0,62$$

Durch Einsetzen erhält man nun ein gaußförmiges Brechungsindexprofil:

$$\Delta n(-z) = \Delta n(0) \cdot e^{-(z/b)^2} \quad (3.2)$$

$\Delta n(0)$ gibt die maximale Brechungsindexänderung (an der Oberfläche) an und b die Breite des Profils. Durch Einsetzen der Werte erhält man das außerordentliche und das ordentliche Brechungsindexprofil:

$$\Delta n_e(-z) = 1,1 \cdot 10^{-2} \cdot e^{-(z/0,86\mu m)^2} \quad (3.3)$$

$$\Delta n_o(-z) = 6,1 \cdot 10^{-3} \cdot e^{-(z/1,03\mu m)^2} \quad (3.4)$$

Das Gesamtbrechungsindexprofil in dem für die Simulationen verwendeten Rechenfenster setzt sich zusammen aus dem so erhaltenen Brechungsindexprofil des Wellenleiters im Kristall, im Falle eines beschichteten Wellenleiters einem Streifen des (konstanten) Brechungsindexprofils der Beschichtung und dem (ebenfalls konstanten) Brechungsindexprofil des Deckmediums.

Im nächsten Schritt werden die Moden berechnet, die sich in der Struktur ausbreiten können. Aus den Wellengleichungen für die Quasi-TE und Quasi-TM Moden lassen sich unter der Annahme eines ausreichend breiten Wellenleiters und in der dafür verwendeten SVEA-Näherung¹ die Helmholtz-Gleichungen aufstellen. Für die Quasi-TE Mode gilt:

$$\left(\frac{d^2}{d(-z)^2} + \frac{d^2}{dy^2} + \frac{\omega^2}{c^2} n_e^2 \right) E_y(-z) = \frac{\omega^2}{c^2} n_{eff}^2 E_y(-z) \quad (3.5)$$

Diese Gleichung stellt ein Eigenwertproblem für $\beta^2 = \omega^2/c^2 \cdot n_{eff}^2$ dar. β wird als Propagationskonstante bezeichnet und stellt den Zusammenhang zwischen Frequenz ω des Lichts im Vakuum, der Lichtgeschwindigkeit c im Vakuum und dem effektiven Brechungsindex n_{eff} dar. Analog lässt sich die Helmholtz-Gleichung für die Quasi-TM Moden aufstellen:

$$\left(n_o^2 \frac{d}{d(-z)} \frac{1}{n_o^2} \frac{d}{d(-z)} + \frac{d^2}{dy^2} + \frac{\omega^2}{c^2} n_o^2 \right) H_y(-z) = \frac{\omega^2}{c^2} n_{eff}^2 H_y(-z) \quad (3.6)$$

Wiederum erhält man ein Eigenwertproblem für β^2 . Dieses Eigenwertproblem wurde mit dem numerischen Standardverfahren der finiten Differenzen gelöst [37].

¹SVEA=Slowly Varying Envelope Approximation, engl. für Näherung der sich langsam verändernden Einhüllenden

3.2 Brechungsindex und geführte Moden

Als Grundlage für die im Wellenleiter geführten Moden dient das Brechungsindexprofil, das durch die Eindiffusion von Titan in den LiNbO_3 -Kristall entstanden ist. Durchgeführt wurde die Berechnung mit der im vorangegangenen Abschnitt 3.1 beschriebenen Methode. Berechnet wurde die Eindiffusion eines 10 nm hohen und 6 μm breiten Titanstreifens in LiNbO_3 . Die angenommene Diffusionszeit betrug 2 h, die Temperatur 1273 K. Für den Brechungsindex des LiNbO_3 wurden die von Schlarp et al. ermittelten Werte [38] zugrunde gelegt. Als Deckmedium wurde Luft ($n_{\text{Luft}} = 1,000272$) angenommen.

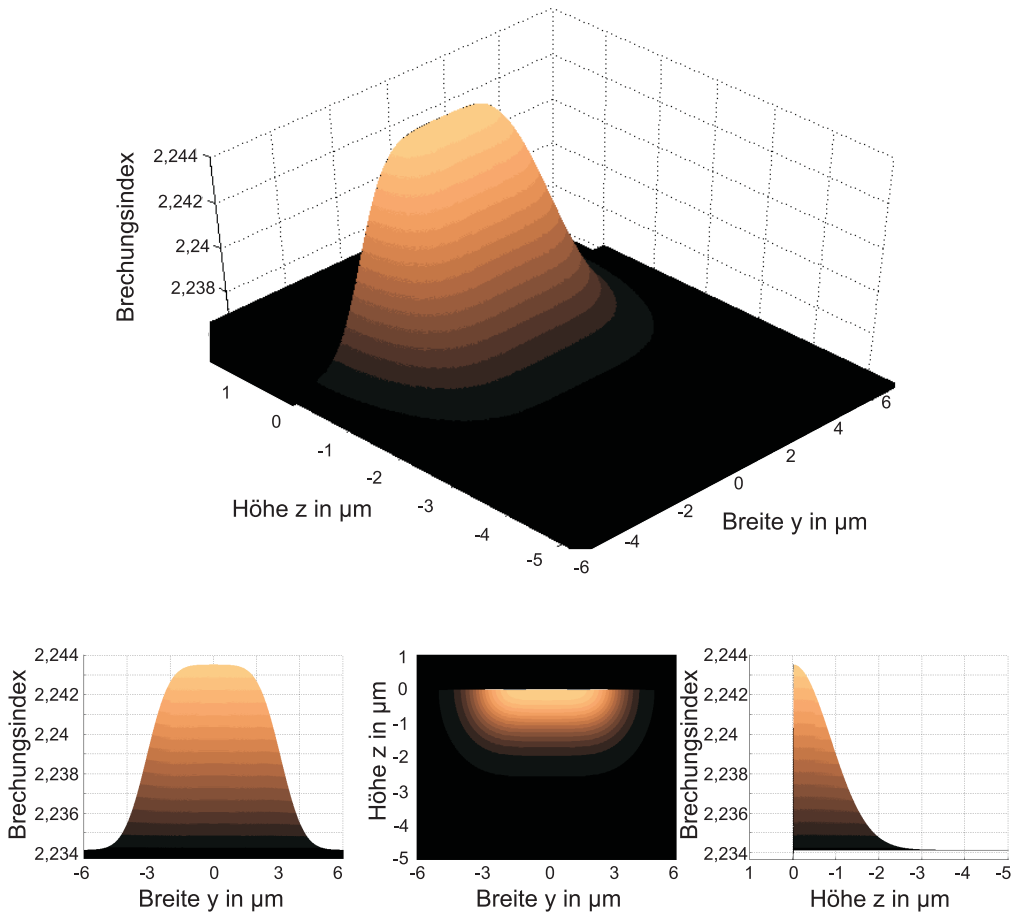


Abbildung 3.1: Brechungsindexverteilung des eindiffundierten Wellenleiters im Querschnitt senkrecht zur Propagationsrichtung des Lichts

In Abb. 3.1 ist die so erhaltene Brechungsindexverteilung in Abhängigkeit von Breite (y) und Höhe (z) bzw. Tiefe ($-z$) des Kristalls (beispielhaft für den außerordentlichen Brechungsindex n_e) dargestellt. Das Koordinatensystem wurde so gelegt, dass die x -Richtung der Propagationsrichtung des Lichts entspricht, auf der y -Achse senkrecht dazu die Breite des Wellenleiters ermittelt werden kann ($y = 0$ liegt in der Mitte des Titanstreifens). Die Höhe z entspricht der Höhe über dem Kristall. Bei $z = 0$ befindet sich die Oberfläche des Kristalls und somit der Brechungsindexsprung zum Deckmedium. Negative z -Werte beziehen sich auf Positionen innerhalb des Kristalls. (Zur Kontrasterhöhung des Farbverlaufs der kleinen Brechungsindexunterschiede in der wellenleitenden Struktur wurde in der Graphik die Farbe des Brechungsindex des Deckmediums mit der des unbearbeiteten Kristalls identisch gewählt.) Wie aus Abb. 3.1 ersichtlich, besitzt das mit den eingestellten Parametern erhaltene eindiffundierte Brechungsindexprofil eine FWHM von $\text{FWHM}_z = 0,9 \mu\text{m}$ in der Tiefe und eine $\text{FWHM}_y = 6,2 \mu\text{m}$ in der Breite (gegenüber dem unbearbeiteten Kristall).

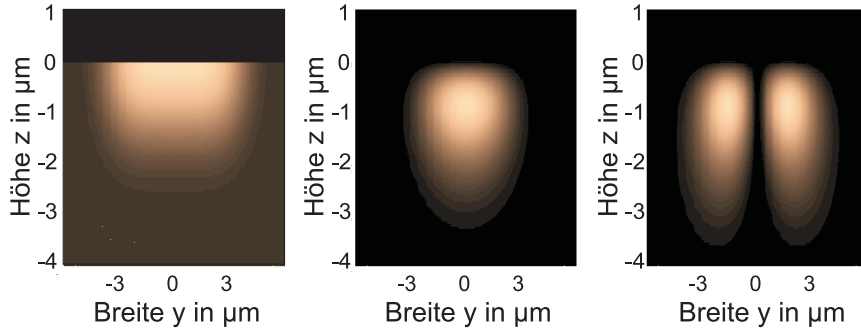


Abbildung 3.2: Brechungsindexprofil (links) und Intensitätsprofil (Mitte und rechts) der ersten beiden geführten TE-Moden ($\lambda = 532 \text{ nm}$) in einem $6 \mu\text{m}$ breiten Wellenleiter

Die Intensitätsverteilung der ersten beiden geführten TE-Moden bei einer Wellenlänge von $\lambda = 532 \text{ nm}$ ist in Abb. 3.2 Mitte und rechts dargestellt. Die Simulation wurde auf einem $12 \mu\text{m}$ (Höhe bzw. Tiefe) x $8 \mu\text{m}$ (Breite) großen Fenster durchgeführt, das in 600×400 Gitterpunkte unterteilt war. Links in der Abbildung ist noch einmal das Brechungsindexprofil des $6 \mu\text{m}$ breiten Wellenleiters zum Vergleich zu sehen. Obwohl experimentell bei Wellenleitern mit Streifenbreiten $< 8 \mu\text{m}$ nur die erste Mode angeregt werden konnte, sagt die numerische Simulation mehrere geführte Moden in Abhängigkeit der Streifenbreite voraus. In Tabelle 3.1 ist zusammengefasst,

ab welcher berechneten Streifenbreite die jeweiligen höheren Moden geführt werden können.

	TE	TM
Anzahl	Streifenbreite in μm	
1	1,3	1,3
2	3,2	3,5
3	5,9	6,4
4	8,1	8,9

Tabelle 3.1: Anzahl der geführten TE- und TM- Moden ($\lambda = 532 \text{ nm}$) ab einer Streifenbreite in μm in der Simulation

3.3 Einfluss einer hochbrechenden dielektrischen Beschichtung

3.3.1 Einfluss der Beschichtungsdicke

Interessant für die weiteren Untersuchungen ist das Verhalten des Feldes bzw. der Intensität an der Grenzschicht des Deckmediums (Luft). Der Anteil der Mode im Deckmedium über dem Wellenleiter ist durch das evaneszente Feld gegeben, dessen Verlauf im Folgenden berechnet und spezifiziert wird. Insbesondere soll untersucht werden, unter welchen Parametern eine Evaneszentfelderhöhung an der Grenzfläche durch eine hochbrechende dielektrische Beschichtung erzielt werden kann. Hierdurch kann später im Experiment eine gezielte Manipulation zur Erhöhung der evaneszenten Feldintensität an der Grenzfläche durchgeführt werden. Im Experiment wurden die LiNbO_3 -Kristalle mit TiO_2 besputtert. Für die Berechnungen wurde ein Brechungsindex der Metalloxidschicht von 2,5 zugrunde gelegt (s.u.). Als Deckmedium über der Schicht wurde Luft verwendet. Die Berechnungen beziehen sich auf die erste im Wellenleiter geführte Mode.

In den Abb. 3.4 und 3.6 ist die Feldstärke quer durch Kristall und Deckmedium ($y = 0$) für TE und TM Polarisierung aufgetragen. Die Simulation wurde auf einem $12 \mu\text{m}$ (Tiefe) x $8 \mu\text{m}$ (Breite) großen Fenster durchgeführt, das in 600×400 Gitterpunkte unterteilt war. Der kleinste Abstand der Gitterpunkte in der Schicht und somit die numerisch bedingte Auflösung betrug $\Delta z = 4,17 \text{ nm}$. Berechnet wurde die Feldverteilung in Abhängigkeit der Schichtdicke des TiO_2 . Es ist zu erkennen, wie mit zunehmender

Schichtdicke der Schwerpunkt der Feldverteilung in Richtung Beschichtung und Deckmedium, also zu größeren z rückt. Ab einer kritischen Beschichtungsdicke von ca. 85 nm (TE) bzw. 90 nm (TM) kommt es zu sogenannten Substratmoden, d.h. das Licht kann in der Beschichtung propagieren, es wird nicht mehr im Wellenleiter geführt. Die Ausbreitung von Substratmoden ist in Abb. 3.3 dargestellt in Analogie zu den geführten Moden in Abb. 3.2. Links ist das Brechungsindexprofil des mit einem 100 nm dick mit TiO_2 beschichteten $6\text{ }\mu\text{m}$ breiten Wellenleiters abgebildet, in der Mitte und rechts die Intensitätsprofile der ersten berechneten sowie einer höheren in der Schicht geführten Substratmoden (TE, $\lambda = 532\text{ nm}$). Die Knoten der Struktur der höheren Mode sowie die endliche Ausdehnung der ersten Mode in lateraler Richtung (y) sind eine Folge der endlichen Breite des numerischen Rechenfesters.

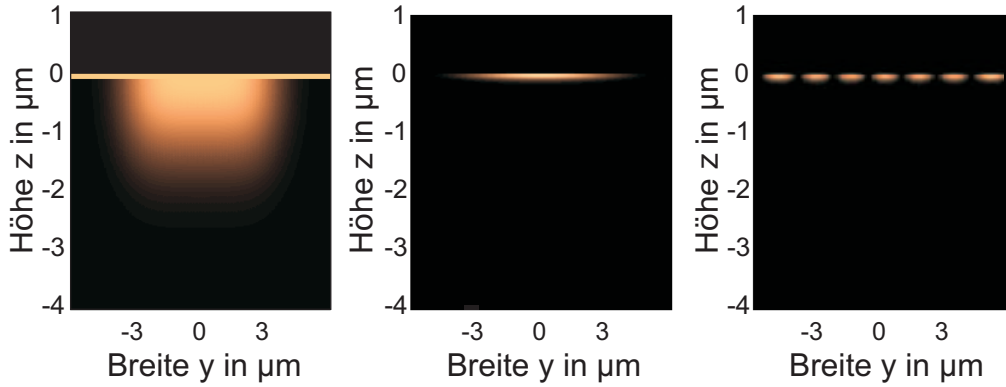


Abbildung 3.3: Brechungsindexprofil (links) des beschichteten Wellenleiters und Intensitätsprofil (Mitte und rechts) der ersten und einer höheren Substratmode

Rechts neben den Abb. 3.4 und 3.6 sind in Abb. 3.5 und 3.7 die zugehörigen evaneszenten Feldanteile im Deckmedium in logarithmischer Auftragung dargestellt. $z = 0$ bezeichnet immer den ersten Gitterpunkt im Deckmedium. Die Skalierung der y -Achse ergibt sich aus den auf 1 normierten Integralen über die Feldverteilungen. Alle in Abb. 3.5 und 3.7 geplotteten Kurven verlaufen (in der logarithmischen Darstellung) parallel. Dies bedeutet, dass die Eindringtiefe des evaneszenten Feldes (also der den exponentiellen Abfall charakterisierenden Parameter) nicht durch die (dünne) Beschichtung beeinflusst wird.

In analoger Weise sind in Abb. 3.8 - 3.11 die zugehörigen Intensitätsverteilungen im Querschnitt durch den Kristall und in der Grenzschicht des

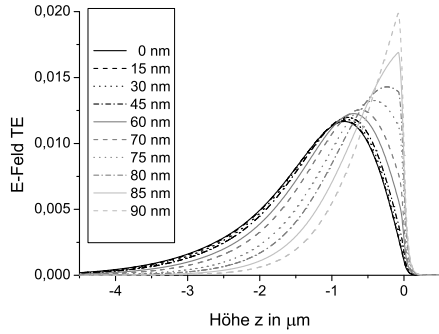


Abbildung 3.4: TE-polarisiertes E-Feld in Abhängigkeit von der Höhe z für verschiedene Beschichtungsdicken

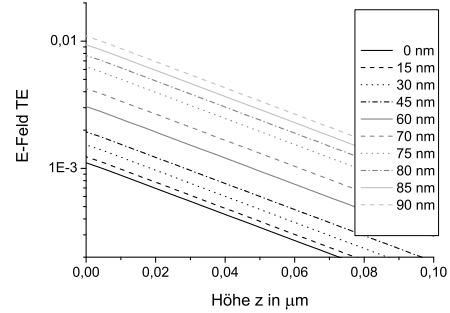


Abbildung 3.5: Ausschnitt aus Abb. 3.4: Evaneszentes Feld in der Grenzschicht

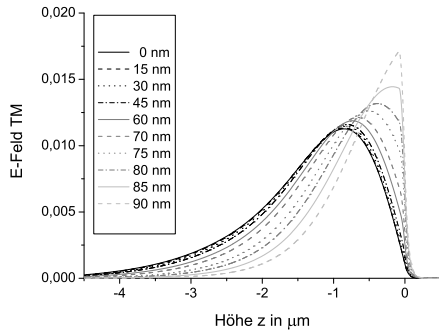


Abbildung 3.6: TM-polarisiertes E-Feld in Abhängigkeit von der Höhe z für verschiedene Beschichtungsdicken

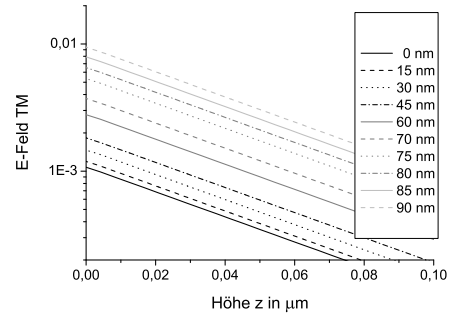


Abbildung 3.7: Ausschnitt aus Abb. 3.6: Evaneszentes Feld in der Grenzschicht

Deckmediums aufgetragen. Wieder verlaufen alle in Abb. 3.9 und 3.11 geplotteten Kurven parallel. Ihre Steigung ist doppelt so groß wie die der evaneszenten Felder, was den Zusammenhang $d_{p,Feld} = 2 \cdot d_{p,Int}$ bestätigt. Außerdem ist die zunehmende Intensitätserhöhung mit zunehmender Schichtdicke an der Grenze $z = 0$ ersichtlich. Die daraus resultierenden Werte der Intensitätserhöhung an der Grenzschicht $I_{besch}/I_{unbesch}$ sind in Abhängigkeit von der Beschichtungsdicke in Abb. 3.12 zusammengefasst. Aus dieser Abbildung wird ersichtlich, dass die optimale Beschichtungsdicke bei etwa 80 - 85 nm liegt. Hier ist die Intensität um einen Faktor > 50 erhöht. Wird die Beschich-

tungsdicke weiter erhöht, steigt zwar der Faktor $I_{besch}/I_{unbesch}$ noch weiter an, allerdings kann in diesem Fall das Licht nicht mehr im Wellenleiter geführt werden, es entsteht eine Substratmode.

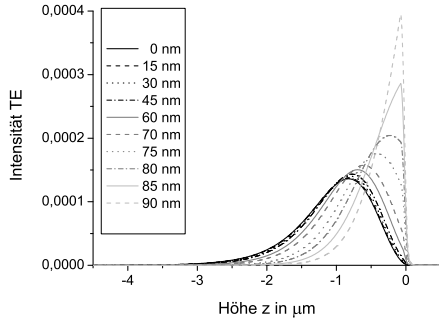


Abbildung 3.8: Intensität (TE) in Abhängigkeit von der Höhe z für verschiedene Beschichtungsdicken

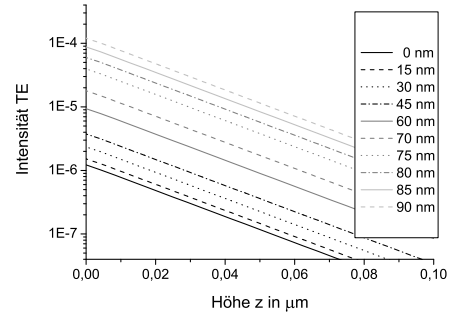


Abbildung 3.9: Ausschnitt aus Abb. 3.8: Evaneszente Feldintensität in der Grenzschicht

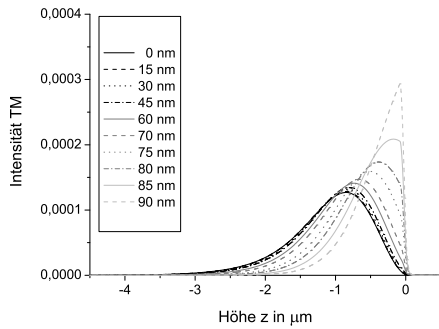


Abbildung 3.10: Intensität (TM) in Abhängigkeit von der Höhe z für verschiedene Beschichtungsdicken

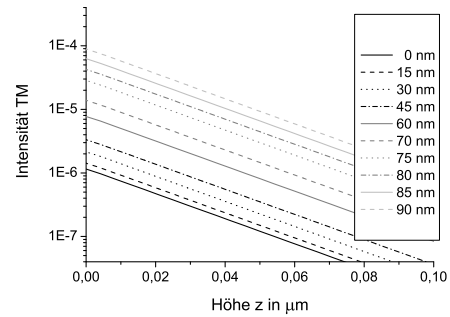


Abbildung 3.11: Ausschnitt aus Abb. 3.10: Evaneszente Feldintensität in der Grenzschicht

Mit der Beschichtungsdicke nimmt auch der effektive Brechungsindex n_{eff} des Wellenleiters zu. Die berechnete Abhängigkeit des effektiven Brechungsindex n_{eff} von der Schichtdicke ist in Abb. 3.13 aufgetragen. Der effektive Brechungsindex ist definiert analog zur Brechzahl n , die die Erhöhung der Wellenzahl im homogenen transparenten Medium k gegenüber der Wellenzahl im Vakuum k_0 angibt: $n = k/k_0$. Somit gibt der effektive Brechungsindex ebenfalls die Phasenverzögerung pro Einheitslänge in einem Wellenleiter relativ zur Phasenverzögerung im Vakuum an. Hierbei ist zu beachten, dass

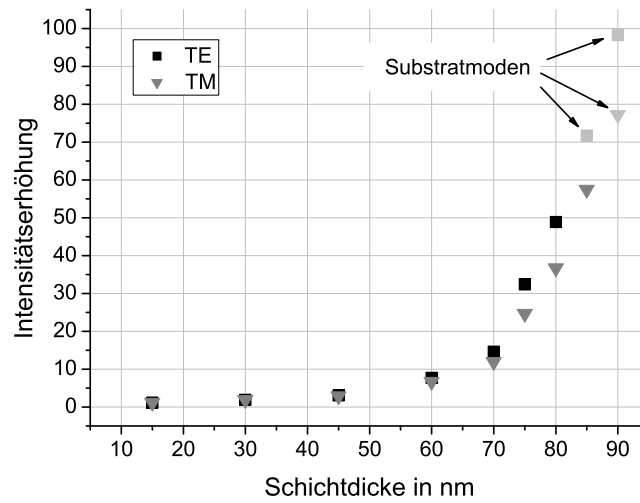


Abbildung 3.12: Intensitätserhöhung an der Grenzschicht ($z = 0$) in Abhängigkeit von der Schichtdicke

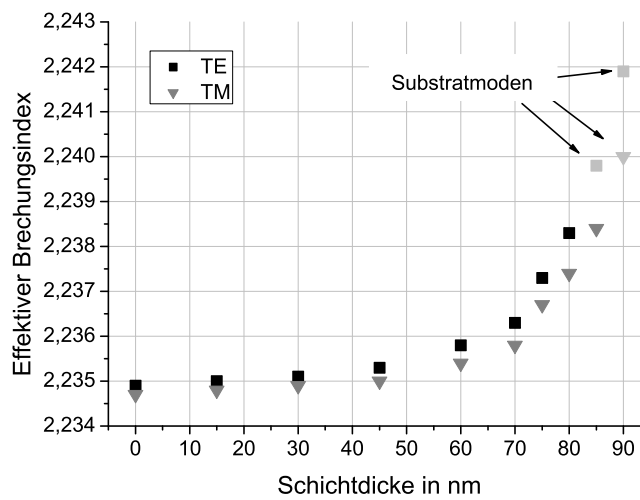


Abbildung 3.13: Effektiver Brechungsindex in Abhängigkeit von der Schichtdicke

sich der effektive Brechungsindex stets auf eine bestimmte Mode, in diesem Fall die Grundmode, bezieht. Der Zusammenhang zur Propagationskonstante β einer Mode des Wellenleiters ist gegeben durch: $\beta = n_{eff} \frac{2\pi}{\lambda_0}$, mit der Vakuumwellenlänge λ_0 .

3.3.2 Einfluss des Brechungsindex der Beschichtung

Der Brechungsindex der TiO_2 -Beschichtung hängt davon ab, in welcher Modifikation sich die Beschichtung befindet. Durch den Herstellungsprozess kann sowohl Rutil mit Brechungsindizes von $n > 2,65$ [39] oder auch Anatase mit Brechungsindizes von $n < 2,40$ [40] sowie Mischformen vorliegen. Da abgesehen vom Brechungsindex keine weiteren Materialeigenschaften der Deckschicht in die Berechnung eingehen, werden die Untersuchungen über den gesamten relevanten Bereich am Beispiel einer 75 nm dicken Schicht durchgeführt.

Die Abb. 3.14 - 3.17 zeigen den Intensitätsverlauf der geführten Mode in Abhängigkeit von der z-Position und dem verwendeten Brechungsindex der Beschichtung in analoger Weise zu Abb. 3.8 - 3.11. Zunächst ist hierbei wieder anzumerken, dass die Moden ab einem kritischen Brechungsindex der Beschichtung von $n_{krit} \approx 2,55$ wieder in Substratmoden übergehen und nicht mehr im Wellenleiter geführt werden.

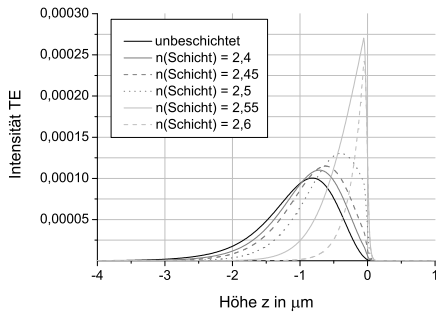


Abbildung 3.14: Intensität (TE) in Abhängigkeit von der Höhe z für verschiedene Brechungsindizes der TiO_2 -Schicht

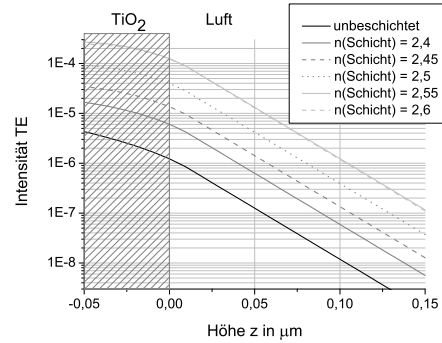


Abbildung 3.15: Ausschnitt aus Abb. 3.14: Evaneszente Feldintensität in der Grenzschrift

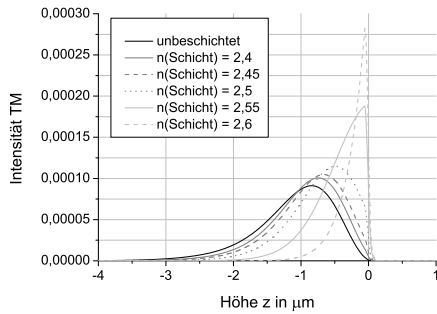


Abbildung 3.16: Intensität (TM) in Abhängigkeit von der Höhe z für verschiedene Brechungsindizes der TiO_2 -Schicht

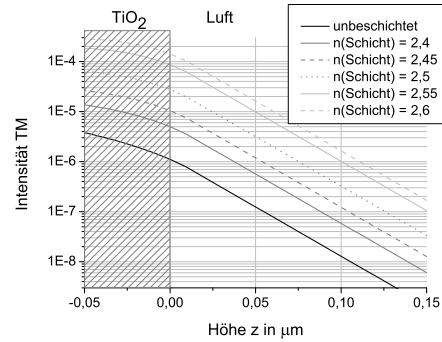


Abbildung 3.17: Ausschnitt aus Abb. 3.16: Evaneszente Feldintensität in der Grenzschrift

Wieder ist aus den Abb. 3.15 und 3.17 erkennbar, dass die Kurven im Deckmedium in logarithmischer Darstellung parallel verlaufen. Der Brechungsindex hat also keinen Einfluss auf die exponentielle Abhängigkeit. Dies bedeutet insbesondere, dass die Eindringtiefe nicht vom Brechungsindex der Beschichtung abhängt.

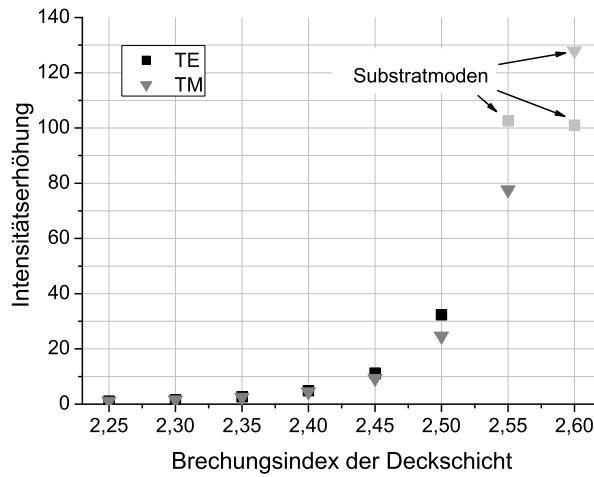


Abbildung 3.18: Intensitätserhöhung an der Grenzschrift in Abhängigkeit vom Brechungsindex der TiO_2 -Schicht

Es kommt ebenfalls zu einer Intensitätserhöhung an der Grenzschicht, hier jedoch hervorgerufen durch die Erhöhung des Brechungsindex der Beschichtung. Die Intensitätserhöhung $I_{besch}/I_{unbesch}$ ist für eine Beschichtungsstärke von 75 nm in Abhängigkeit des Brechungsindex in Abb. 3.18 aufgetragen.

3.4 Einfluss verschiedener Deckmedien auf das evaneszente Feld

Im Folgenden soll der Einfluss verschiedener Deckmedien mit unterschiedlichen Brechungsindizes am Beispiel von Luft mit $n_{Luft} = 1,000272$, Wasser mit $n_{Wasser} = 1,338$ und Ethanol mit $n_{ETOH} = 1,366$ [41] untersucht werden. Für die Beschichtung wurde ein Brechungsindex von 2,50 sowie eine Dicke von 75 nm angenommen.

In den Abb. 3.19 - 3.22 sind die Felder bzw. Intensitäten für TE bzw. TM Polarisation an der Grenzschicht dargestellt. Hierbei wurde für alle drei Deckmedien der Feld- bzw. Intensitätsverlauf sowohl bei unbeschichtetem als auch bei beschichtetem Wellenleiter berechnet. Die bei $z = 0$ eingezeichnete Grenze ist im unbeschichteten Fall die Grenze zwischen dem LiNbO₃-Kristall und dem entsprechenden Deckmedium, im beschichteten Fall kennzeichnet diese Position die Grenze zwischen der TiO₂-Beschichtung des Wellenleiters und dem Deckmedium.

Aus den Graphiken ist der Einfluss des Brechungsindex des Deckmediums anhand der Steigung der logarithmisch aufgetragenen Kurve im Bereich des Deckmediums ersichtlich: Mit zunehmendem Brechungsindex des Deckmediums nimmt die Eindringtiefe des evaneszenten Feldes zu. Die Werte für die aus den Berechnungen erhaltenen Eindringtiefen sind in Tabelle 3.2 zusammengefasst.

Vergleicht man die logarithmisch aufgetragenen Kurve für den beschichteten und den unbeschichteten Fall bei den jeweiligen Deckmedien, so ist die Steigung im Bereich des Deckmediums gleich, die Kurven verlaufen hier parallel. Dies bedeutet und bestätigt, dass die Eindringtiefe des evaneszenten Feldes durch die Beschichtung nicht verändert wird. Die Intensität an der Grenze wird (in Abhängigkeit des Brechungsindex des Deckmediums) um den in der Tabelle 3.2 gegebenen Faktor erhöht.

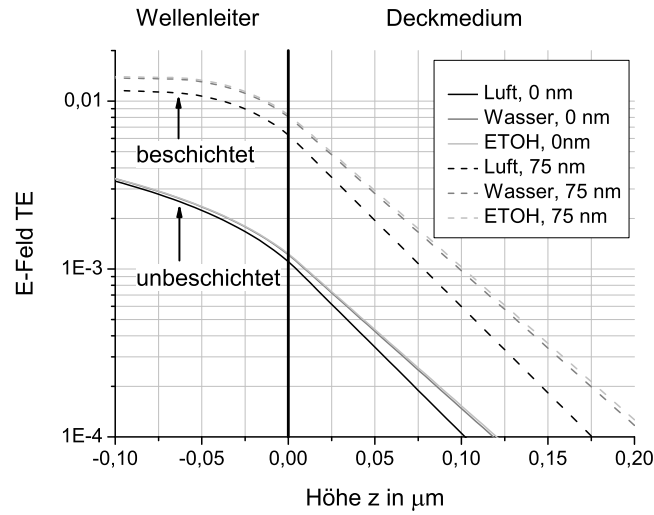


Abbildung 3.19: TE-polarisiertes E-Feld in Abhängigkeit von der Höhe z für verschiedene Deckmedien über beschichtetem und unbeschichtetem Kristall, Ausschnitt an der Grenzschicht

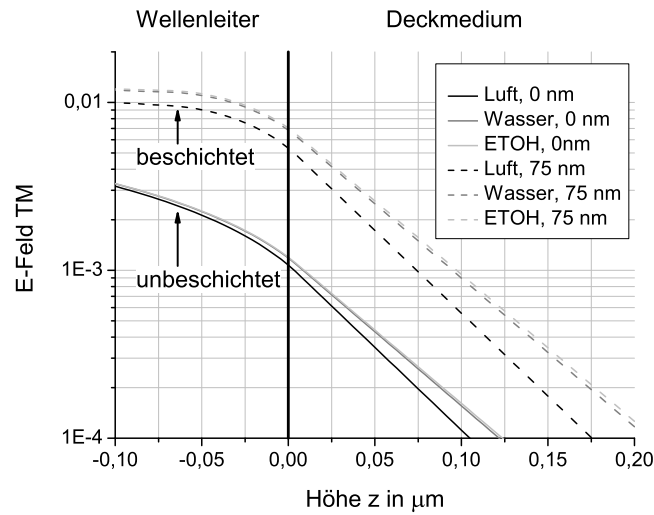


Abbildung 3.20: TM-polarisiertes E-Feld in Abhängigkeit von der Höhe z für verschiedene Deckmedien über beschichtetem und unbeschichtetem Kristall, Ausschnitt an der Grenzschicht

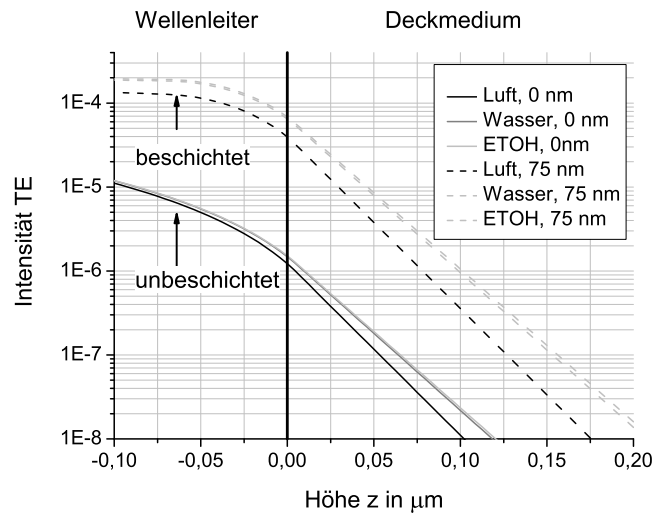


Abbildung 3.21: Zu der in Abb. 3.19 dargestellten Feldverteilung zugehörige Intensitätsverteilung an der Grenzschicht

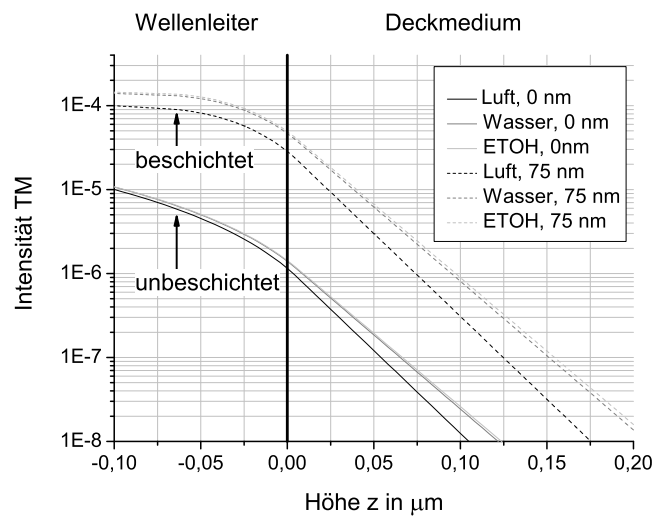


Abbildung 3.22: Zu der in Abb. 3.20 dargestellten Feldverteilung zugehörige Intensitätsverteilung an der Grenzschicht

Deckmedium	n	$d_{p,Feld}$ (nm)		$d_{p,Int}$ (nm)		Intensitätserhöhung	
		TE	TM	TE	TM	TE	TM
Luft	1,000272	42,3	44,1	21,1	22,0	32,4	24,7
Wasser	1,338	47,6	49,5	23,8	24,7	43,9	33,5
ETOH	1,366	48,1	50,8	24,1	25,4	45,4	34,7

Tabelle 3.2: Übersicht über die Eindringtiefen und Erhöhung der Intensität an der Grenzfläche bei verschiedenen Deckmedien

3.5 Gültigkeit und Grenzen der Berechnungen

Mit den gegebenen Materialien und Geometrien können Eindringtiefen der in den Wellenleiter geführten Moden in der Größenordnung von nur wenigen 10 nm erreicht werden. Durch eine dünne hochbrechende Beschichtung kann die Intensität in der Grenzschicht bei Parametern von $n = 2,50$ für den Brechungsindex und 80 nm Schichtdicke bis zu 50-fach erhöht werden.

Die numerischen Simulationen zeigen, dass im Rahmen der numerisch bedingten Auflösung kein Einfluss auf die Eindringtiefe durch den Brechungsindex oder die Dicke der Beschichtung feststellbar war. Wurde allerdings ein Deckmedium mit höherem Brechungsindex verwendet, so erhöhte sich auch die Eindringtiefe.

Zur Erklärung lässt sich wieder vereinfachend der im Abschnitt 2.3 diskutierte planare Wellenleiter heranziehen. Die Eindringtiefe des evaneszenten Feldes eines solchen Wellenleiters ist gegeben durch:

$$d_{p,Feld} = \frac{1}{k_0 \sqrt{n_{eff}^2 - n_{Deckmedium}^2}} \quad (3.7)$$

mit dem Wellenvektor k_0 im Vakuum. Die durch die Beschichtung hervorgerufenen Änderungen des effektiven Brechungsindex Δn_{eff} liegen in der Größenordnung von 10^{-3} , vgl. Abb. 3.13. Das hat eine Änderung der Eindringtiefe von $\Delta d_{p,Feld} \approx 0,1$ nm zur Folge, was im Fehlerbereich der numerischen (und experimentellen) Genauigkeit liegt. Änderungen des Brechungsindex des Deckmediums $\Delta n_{Deckmedium}$ hingegen liegen in der Größenordnung von 0,1, woraus sichtbare Änderungen der Eindringtiefe von im Nanometerbereich resultieren.

Die durch Beschichtung hervorgerufene Intensitätserhöhung in der Grenzschicht nimmt mit steigendem Brechungsindex der Schicht, höherer Schichtdicke sowie höherem Brechungsindex des Deckmediums zu.

Diese Ergebnisse gelten, solange es sich um dünne Beschichtungen handelt. Sobald die Dicke der Beschichtung die Ausbildung von Substratmoden erlaubt, sind diese Abhängigkeiten nicht mehr oder nur noch eingeschränkt gültig.

Mit dem aus den Simulationen erhaltenem Wissen war es möglich, Wellenleiter herzustellen, bei denen es aufgrund einer Beschichtung mit einer hochbrechenden dielektrischen Schicht zu einer gezielten Evaneszentfelderhöhung an der Grenzfläche kommt. Wesentlich hierbei ist, dass die Eindringtiefe des evaneszenten Feldes praktisch unverändert bleibt. Insbesondere für die in Kap. 6 beschriebene durchgeführte Fluoreszenzanregung in der Grenzschicht durch die evaneszenten Felder bedeutet dies eine Erhöhung der Anregungseffizienz bei unverändert hoher Ortsauflösung.

Kapitel 4

Herstellung der Wellenleiter

Die Herstellung wellenleitender Strukturen durch Eindiffusion von Titan in LiNbO_3 - Substrate erfordert mehrere Prozessschritte, auf die in diesem Kapitel eingegangen wird.

Zunächst wurden Chrommasken mit der gewünschten Struktur durch einen standardlithographischen Prozess im Institut für Angewandte Physik an der TU Darmstadt gefertigt. Diese Chrommasken wurden am Institut für Physik und Physikalische Technologien an der Technischen Universität Clausthal verwendet, um Titanstreifen in Form der gewünschten Strukturen in das LiNbO_3 -Substrat eindiffundieren zu lassen.

Bevor die bearbeiteten Substrate zu einem kompletten Bauelement zusammen gefügt wurden, fand eine Qualitätskontrolle in Form von Oberflächen-scans mit einem Rasterkraftfeldmikroskop (AFM, engl. Atomic Force Microscope) sowie durch Aufnahme des Intensitätsprofils der geführten Mode(n) an der Endfläche des Kristalls statt.

4.1 Herstellung der Chrommasken

Die gewünschte Struktur der Wellenleiter wurde mit AutoCAD entworfen, ein Beispiel eines solchen Designs ist in Abb. 4.1 dargestellt. Es handelt sich hierbei um ein Array aus $4 \times 6 \times 6$ parallelen Streifenwellenleitern mit fester Breite und variierenden Abständen. Links ist die auf der Maske eingeschriebene Gesamtstruktur dargestellt, der Ausschnitt rechts zeigt die Substruktur.

Diese Datei kann direkt von der im Institut für Angewandte Physik aufgebauten und entwickelten Lithographieanlage [42] gelesen und geschrieben werden. Hierbei werden die mit Photolack beschichteten Chromsubstrate belichtet, so dass die entstandenen Strukturen nach der Entwicklung in das Chrom geätzt werden können.

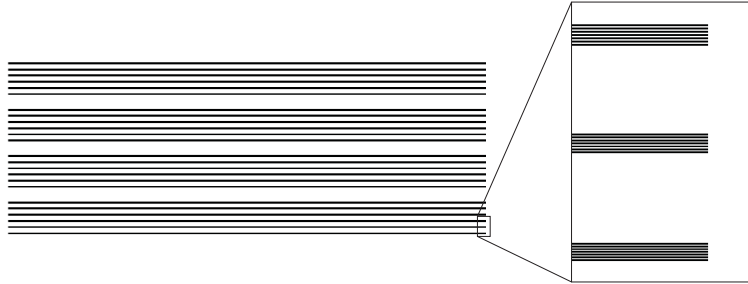


Abbildung 4.1: Array als Beispiel für ein CAD-basiertes Design der Wellenleiterstrukturen. Links: Gesamtstruktur, rechts: Ausschnitt der Substruktur der einzelnen Wellenleiterarrays

Die einzelnen Prozessschritte des Lithographieprozesses und ihre relevanten Parameter sind in der folgenden Aufzählung zusammengefasst:

- Belackten der Substrate
Verwendet wurden 50 mm x 50 mm große BK7-Glassubstrate, die mit einer Chromschicht mit optischer Dichte von $OD > 3,5$ beschichtet waren (laut Hersteller Artifex). Diese wurden im Spin-Coater mit dem Negativresist 1405 der Firma Microresist belackt. Bei gewählten Beschichtungsparametern $\omega = 4000$ rpm, $a = 2000 - 4000$ rpm/s und $t = 45$ s entstand eine ca. 500 nm dicke gleichmäßige Lackschicht.
- Softbake
Zur Stabilisierung der Lackstruktur wurden die Substrate ca. 30 min bei 100°C im Ofen erhitzt.
- Schreibprozess
Mit der Lithographieanlage wurde der Photolack an den durch die AutoCAD-Datei vorgegeben Stellen der Struktur belichtet. Die Wellenlänge des verwendeten Lasers betrug $\lambda = 405$ nm, das Licht wurde mit einem 40-fach Objektiv mit $NA = 0,65$ auf die Lackschicht fokussiert. Mit der Anlage können Strukturen bis zu einer minimalen Größe von ca. 1 μm geschrieben werden [42], was die Herstellung der geforderten Streifenbreiten von 5 μm im Abstand von wenigen μm ermöglichte.
- Entwicklung
Der belichtete Photolack wurde in einem Bad vom zum Lack zugehörigen Entwickler 351 der Firma Microresist, der mit Wasser im Verhältnis

1:1 verdünnt wurde, entwickelt, bis nach ca. 45 s nur noch Lackstreifen an den belichteten Stellen stehen blieben.

- **Hardbake**
Zur weiteren Stabilisierung der Struktur wurden die Substrate analog zum Softbake ca. 30 min bei 130°C im Ofen erhitzt.
- **Ätzen**
Um das Chrom zu entfernen wurden die Substrate in einer Chrom-Ätzlösung für ca. 2:15 min geschwenkt. Nur an den Stellen, die mit Photolackstreifen überzogen waren, blieb das Chrom auf dem Substrat.
- **Säubern**
Nach einem kurzen Abspülen mit Wasser konnte der restliche Photolack mit Aceton entfernt werden.

Nach der erfolgreichen Durchführung dieser Prozessschritte erhält man die gewünschten Glassubstrate mit Chromstreifen in Form der vorgegebenen (Wellenleiter-) Strukturen.

4.2 Eindiffusion des Titans in die LiNbO₃-Kristalle

Die Chrommasken wurden verwendet um Titanstreifen in Form der auf den Masken befindlichen Strukturen in die LiNbO₃-Kristalle eindiffundieren zu lassen. Die einzelnen Prozessschritte hierzu sind in Abb. 4.2 skizziert und in der folgenden Aufzählung erläutert:

- **Zuschneiden der Substrate**
Als Substrate wurden kommerziell erhältliche, undotierte kongruente LiNbO₃-Wafer verwendet. Diese wurden in x-Richtung geschnitten (x-cut, oder auch x-y-cut). Das bedeutet, dass der Wellenleiter parallel zur z-Achse des Kristalls verläuft, die mit der c-Achse zusammenfällt. Typische Abmessungen der Substrate sind 1 x 7,8 x 20-30 mm³ in x-y-z(\equiv c).
- **Sputtern**
Auf die zugeschnittenen Substrate wurde per Elektronenstrahl-Sputtern eine 10 nm dicke Titanschicht aufgedampft.
- **Belacken mit Photoresist**
Im Spin-Coater wurde eine 500 nm dicke Schicht Photoresist AZ 1518

der Firma Microchemicals aufgetragen, die Prozessparameter waren $\omega = 5000$ rpm, $a = 2000$ rpm/s, $t = 35$ s.

- Softbake
Zur besseren Vernetzung des Photoresists wurde das Substrat für ca. 2 min bei 100°C auf der Heizplatte erhitzt.
- Belichtung
Die Chrommaske wurde im Maskaligner über dem Substrat positioniert und beides mit einer Hg-Lampe im UV belichtet.
- Entwicklung
Der belichtete Resist wurde im Entwicklerbad bestehend aus mit Wasser im Verhältnis 2:1 verdünnten Entwickler AZ351B entwickelt.
- Softbake
Anschließend wurde das Substrat zur weiteren Stabilisierung der Struktur erneut für ca. 2 min bei 115°C auf der Heizplatte erhitzt.
- Ätzen
Das Substrat wurde mit Flußsäurelösung (4%ig) geätzt, so dass das Titan an den Stellen abgelöst wurde, an denen sich kein Photoresist befand.
- Photoresist entfernen
Mit Remover (=Chemikalie zum Entfernen des Photoresists) wurde der übrig gebliebene Photoresist entfernt.
- Tempern
Das Substrat mit den Titanstreifen wurde für 2h bei 1000°C im Ofen in Luftatmosphäre erhitzt, wobei das Titan in das LiNbO_3 eindiffundiert.

In den Bereichen, in denen Titan eindiffundiert wurde, erhöht sich an der Oberfläche der Brechungsindex um etwa $\Delta n = 10^{-3}$ (mit einer Halbwertsbreite in der Tiefe von ca. $1\ \mu\text{m}$). Diese Brechungsindexvariation stellt den Wellenleiter dar, in dem das Licht geführt wird. Sowohl Brechungsindexverteilung als auch die Modenverteilung des geführten Lichts wurden numerisch simuliert, worauf detailliert in Kap. 3 eingegangen wurde.

Um Licht mit einer Faser in den Wellenleiter ein- und gegebenenfalls auskoppeln zu können, müssen die Endflächen des Kristalls poliert werden. Die Effizienz der Einkopplung hängt stark von der Qualität der Endfläche ab. Darum wurde in zwei Schritten poliert: Zunächst wurden die Endflächen

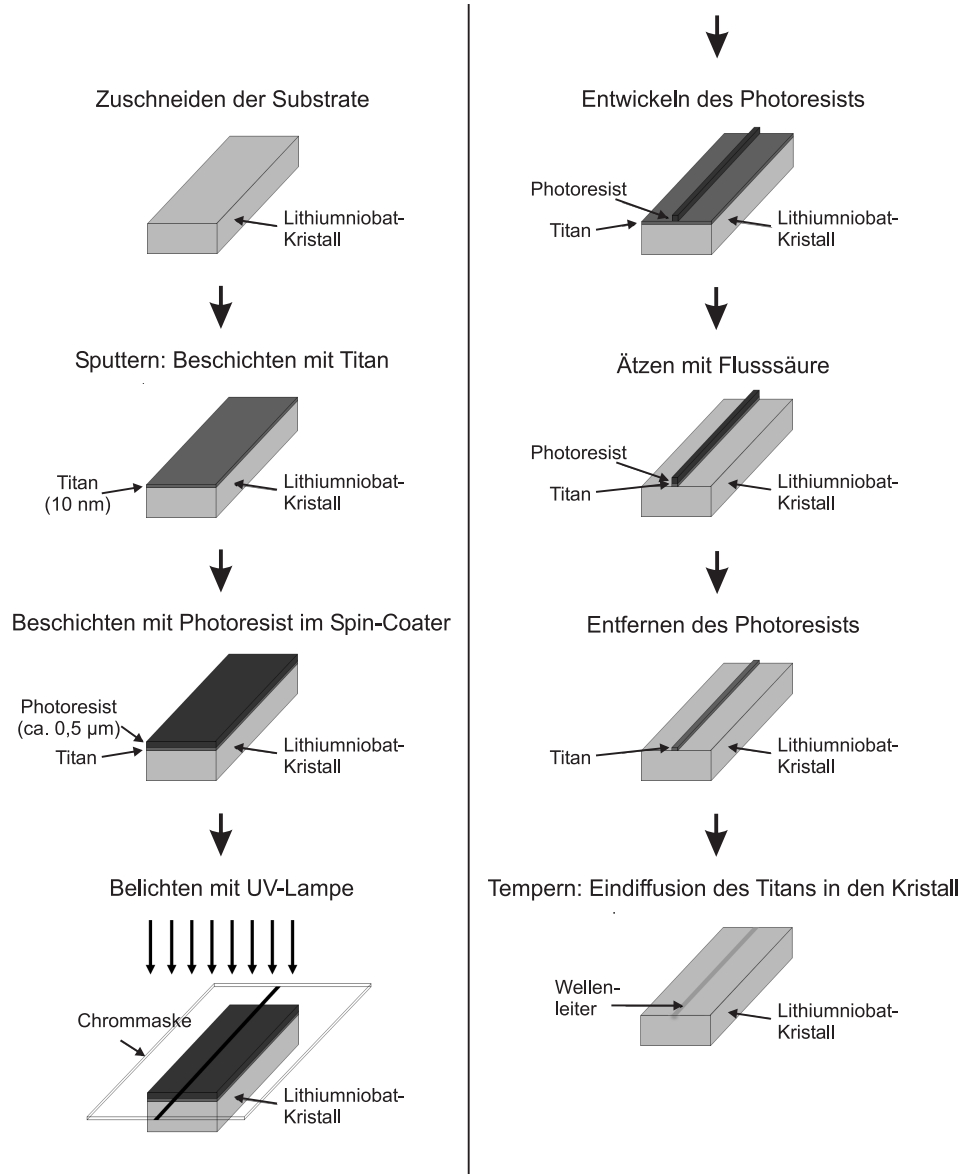


Abbildung 4.2: Herstellungsschritte des eindiffundierten Wellenleiters

mit SiC-Papier geschliffen, das tatsächliche Polieren geschah anschließend mit Samt und einem Wasser-Syton-Gemisch als Poliermittel.

Die Wellenleitersubstrate können nun verwendet werden. Optional wurde bei einigen Proben noch eine 75 nm dicke TiO_2 -Beschichtung bei einer Substrattemperatur von 250°C reaktiv aufgesputtert.

4.3 Qualitätskontrolle des Herstellungsprozesses

Bevor die Kristalle mit den eingeschriebenen Wellenleiterstrukturen fest in ein Bauelement mit fixierter Fasereinkopplung eingebaut werden, muss die Qualität der Wellenleiter überprüft werden. Das Hauptkriterium für gute Qualität ist neben Glattheit der polierten Endflächen die Homogenität der Struktur über die gesamte Propagationslänge. Neben der Qualität des Ausgangsmaterials ist die Homogenität der eindiffundierten Struktur essentiell, d.h. der Querschnitt der Brechungsindexverteilung soll über die Gesamtlänge gleich bleiben. Dies ist Voraussetzung für eine konstante Modenverteilung, die sowohl bei der theoretischen als auch bei der experimentellen Charakterisierung zugrunde gelegt wurde. Insbesondere können so auch die nicht von der Absorption des Materials hervorgerufenen Intensitätsverluste, vor allem durch Streuung an Störstellen, klein gehalten werden.

Generell entstehen Intensitätsverluste während der Propagation durch Defekte wie Kratzer oder (schlimmstenfalls) unterbrochene Kanäle. Diese können durch Defekte am Kristall verursacht werden, in der Regel aber sind sie während eines der Schritte des Produktionsprozesses entstanden, die in den beiden vorangegangenen Abschnitten beschrieben wurden.

Der erste Schritt der Qualitätskontrolle erfolgt optisch durch Untersuchung des Streulichtes an der Oberfläche, wenn Licht in den Wellenleiter an der Endfläche mit einer Faser eingekoppelt wurde. Oberflächendefekte wirken als Streuzentren, an denen das geführte Licht gestreut und in Form von Photonen ausgekoppelt wird. Diese sind meist schon mit dem bloßen Auge sichtbar.

4.3.1 Rasterkraftmikroskopische Untersuchung der Oberfläche

Detaillierte Informationen über die Beschaffenheit der Oberfläche erhält man durch Abrastern mit einem sogenannten Rasterkraftmikroskop (AFM). Hierbei wird ein Höhenprofil mit Höhenauflösung im nm-Bereich erstellt.

Abb. 4.3 zeigt einen im Institut für Experimentalphysik der Universität des Saarlandes aufgenommenen Scan des Wellenleiters. Ein Querschnitt des daraus entnommenen Höhenprofils ist in Abb. 4.4 dargestellt.

In Abb. 4.3 ist zu erkennen, dass die Oberfläche des Wellenleiters im abgescannten Bereich sehr homogen ist; es sind keine offensichtlichen Defekte, Unterbrechungen oder starke Höhenschwankungen zu erkennen, was für eine gute Qualität des Wellenleiters spricht. Die verschwommenen Querstreifen

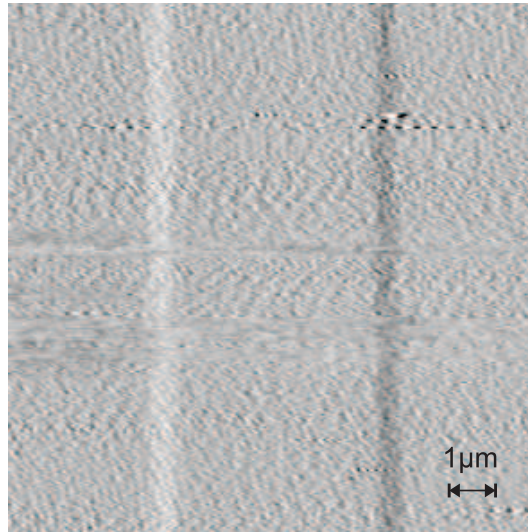


Abbildung 4.3: AFM-Scan des Wellenleiters

in der Mitte des Bildes sind Artefakte des AFM-Scans bzw. auf Fehler der Messsoftware bei der Verarbeitung der aufgenommen Daten zurückzuführen.

Das Profil des Wellenleiters ergibt sich aus dem Eindiffusionsprozess. Wie Abb. 4.4 zu entnehmen ist, ist der Streifen, auf dem das Titan eindiffundiert

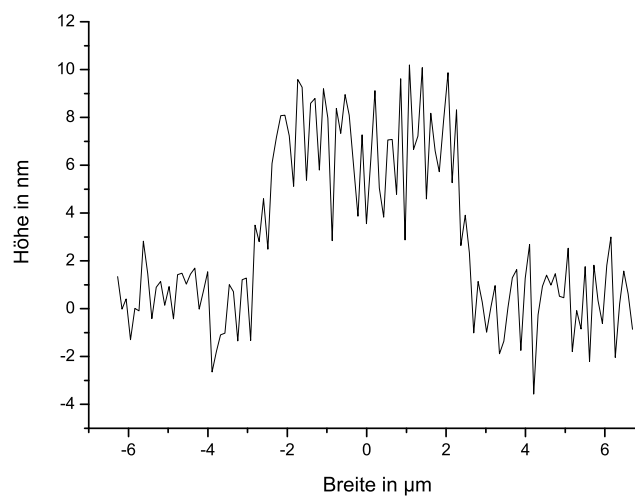


Abbildung 4.4: Höhenprofil des in Abb. 4.3 dargestellten Scans

wurde, im Mittel um etwa 7 nm gegenüber der unbearbeiteten Kristalloberfläche erhöht. Die zackige Oberflächenstruktur ist bedingt durch die Messgenauigkeit des AFM. Das Signal-Rausch-Verhältnis, das durch die Parameter des AFM bestimmt wird, liegt bei $S/N = 1,3$. Aus den Simulationen in Abschnitt 3.2 geht hervor, dass der mit den gegebenen Produktionsparametern hergestellte Wellenleiter eine Tiefe von ca. $1\text{ }\mu\text{m}$ (FWHM) in den Kristall besitzt.

Der Wellenleiter hat nominell, also gemäß des CAD-Entwurfes eine Breite von $6\text{ }\mu\text{m}$. Wie der in Abb. 4.4 dargestellten Messung zu entnehmen ist, liegt das gemessene FWHM der Breite bei etwa $5,2\text{ }\mu\text{m}$. Die Abweichungen zur nominellen Breite können bei verschiedenen Schritten in der Herstellung von Wellenleiter und Maske entstehen. Die empfindlichsten Parameter in der Herstellung bezüglich der Streifenbreite sind die Temperaturstabilität beim Tempern sowie die Dauer der Ätzprozesse und der Entwicklung der Photoresiste.

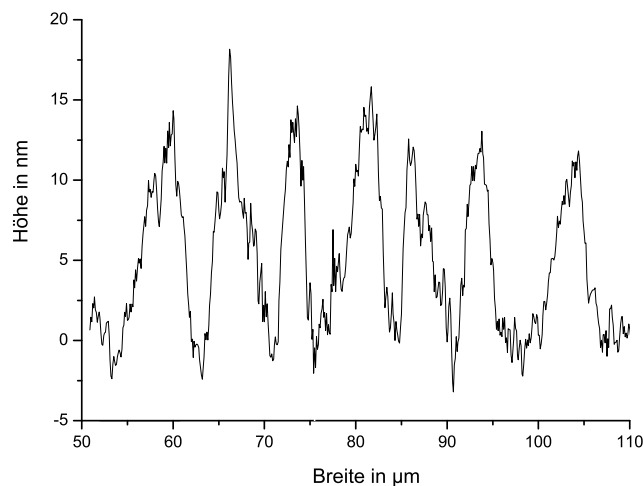


Abbildung 4.5: Mit dem AFM gemessenes Höhenprofil eines Wellenleiterarrays mit jeweils $5\text{ }\mu\text{m}$ Breite und $9\text{ }\mu\text{m}$ Abstand der Zentren.

In Abb. 4.5 ist ein mit dem am Institut für Angewandte Physik der TU Darmstadt aufgebauten AFM aufgenommener Querscan eines Wellenleiterarrays dargestellt. Das Wellenleiterarray wurde mit den selben Produktionsparametern hergestellt wie der in Abb. 4.3 dargestellte Wellenleiter. Nominell sind die Wellenleiter jeweils $5\text{ }\mu\text{m}$ breit, wobei der Abstand zwischen den Zentren $9\text{ }\mu\text{m}$ beträgt. Die gemessenen Breiten der einzelnen Wellenleiter

liegen bei durchschnittlich $3,24 \pm 1 \mu\text{m}$), wobei die Kanten flacher abfallen als im Fall des einzelnen Streifenwellenleiters. Diese Verbreiterung wird neben dem möglichen Einfluss der oben angesprochenen produktionsbedingten Faktoren insbesondere dadurch hervorgerufen, dass die Diffusionsprofile der einzelnen, nur wenige (nominell 4) μm von einander entfernten Wellenleiter im Kristall überlappen. Die Höhe der einzelnen Streifen wurde experimentell zu $13,6 \pm 1,5 \mu\text{m}$ über dem unbearbeiteten Kristall bestimmt. Die zackige Struktur der Wellenleiter ist erneut auf die Messgenauigkeit des AFM unter den gegebenen experimentellen Bedingungen zurückzuführen. Das Signal-Rausch-Verhältnis der Messung beträgt $S/N = 4,2$.

4.3.2 Profil der geführten Moden an der Endfläche

Eine weitere Möglichkeit, die Qualität der Wellenleiter zu kontrollieren, ist die Überprüfung des Strahlprofils der geführten Mode(n) an der Endfläche. Hierzu wurde Licht eines frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers ($\lambda = 532 \text{ nm}$) über eine Faser in den Wellenleiter eingekoppelt und die Endfläche mit einer Linse auf eine CCD-Kamera abgebildet.

In Abb. 4.6 ist das mit der CCD-Kamera aufgenommene Intensitätsprofil der in den einzelnen Kanälen eines Wellenleiterarrays geführten Moden dargestellt. Auf der verwendeten Maske war ein Array mit jeweils $5 \mu\text{m}$ Streifenbreite und $13 \mu\text{m}$ Abstand zwischen den Zentren der Chromstreifen geschrieben. Wie aus der Abbildung ersichtlich, haben die einzelnen Spots ein ähnliches Intensitätsprofil.

Weiterhin ist in Abb. 4.6 erkennbar, dass das in den einzelnen Wellenleitern geführte Licht in diesem Abstand auf der gegebenen Propagationslänge von 25 mm nicht erkennbar in die benachbarten Wellenleiter einkoppelt. Anders bei dem für Abb. 4.7 verwendeten Array mit $5 \mu\text{m}$ Streifenbreite und nur $9 \mu\text{m}$ Abstand: Hier wurde in den linken Wellenleiter Licht eingekoppelt, das geführte Licht koppelt während der Propagation in die benachbarten ein, so dass an der Endfläche Intensität in mehreren Kanälen sichtbar ist. Weiterhin ist aus Abb. 4.7 (aus dem Abstand der Spots) ersichtlich, dass der zweite Kanal von links einen größeren Defekt aufweisen muss, da hier keine erkennbare Lichtintensität ausgekoppelt wird. Dies ließ sich bestätigen durch weitere Experimente, bei denen bei Einkopplung in jeden der Wellenleiter in keinem Fall Licht aus dem zweiten Kanal ausgekoppelt wurde.

Ein detaillierter Vergleich der Lichtintensitäten an der Endfläche wurde jedoch nicht als Qualitätskriterium verwendet, da hierzu eine zuverlässige Reproduzierbarkeit bei der Einkopplung in die einzelnen Wellenleiter gegeben sein muss. Diese bestand bei den experimentellen Gegebenheiten nicht. Die Problematik wird auch im folgenden Abschnitt diskutiert.

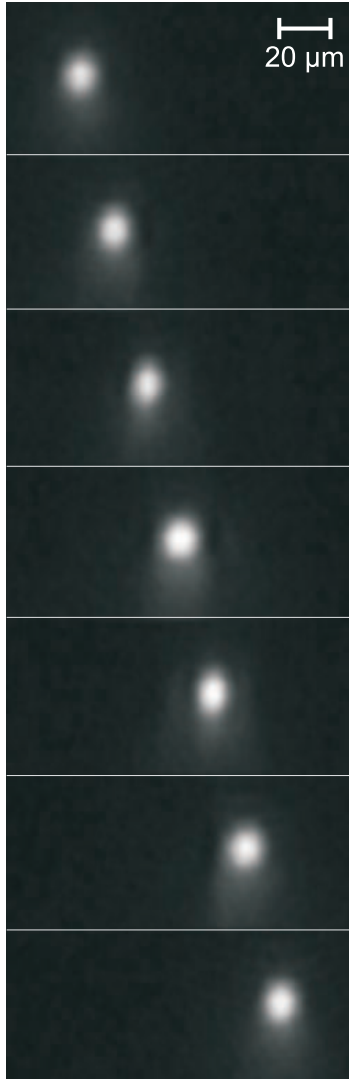


Abbildung 4.6: Modenprofil an den einzelnen Kanälen eines Wellenleiterarrays mit jeweils $5\ \mu\text{m}$ Breite und $13\ \mu\text{m}$ Abstand der Zentren

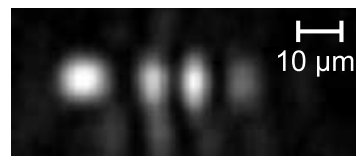


Abbildung 4.7: Modenprofil eines Wellenleiterarrays mit jeweils $5\ \mu\text{m}$ Breite und $9\ \mu\text{m}$ Abstand der Zentren bei Einkopplung in den linken Wellenleiter. Der zweite Kanal von links ist offensichtlich defekt.

4.4 Fasereinkopplung

Nach erfolgreicher Qualitätskontrolle kann das Kristall mit den eingeschriebenen Wellenleitern in einem Bauelement fixiert werden. Dieses besteht im Wesentlichen aus einem Trägersubstrat aus Glas, auf das der Kristall geklebt wird, sowie ein oder zwei Fasern an den Endflächen zum Ein- und gegebenenfalls Auskoppeln des Lichts.

Der Vorteil des Festeinbaus der Kristalle in die Bauelemente liegt neben der bequemeren Handhabung in der Reproduzierbarkeit des geführten Strahlprofils sowie der festen Einkopplungseffizienz.

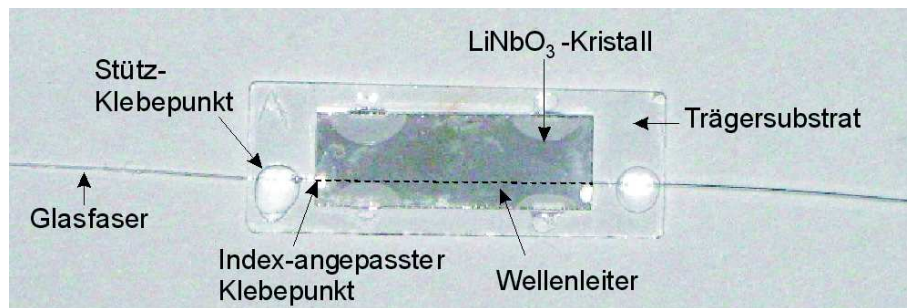


Abbildung 4.8: Wellenleiter mit fixierten Fasern

Abb. 4.8 zeigt ein solches Bauelement mit zwei angeklebten Fasern für die Ein- und Auskopplung. Verwendet wurden Singlemodefasern für die in den Experimenten verwendeten Wellenlängen von 488 nm, 514 nm und 532 nm. Die (charakteristischen) Parameter der auf dem Foto in Abb. 4.8 verwendeten Faser sind: Siliziumkern, Cutoff bei 460 nm, Mode Field Diameter (1/e) von $3,5\ \mu\text{m}$ (laut Hersteller Thorlabs). Die nominelle numerische Apertur ist 0,13, die Dämpfung 30 dB/km bei 515 nm. Am anderen Ende der Faser, in das Licht eingekoppelt wird, befindet sich zur bequemeren Handhabung ein FC-Stecker. Das an den Kristall angeklebte Ende wurde „gecleaved“, d.h. mit einer scharfen Klinge abgeschnitten um eine glatte, nicht streuende Endfläche zu erhalten. Dieses Ende wurde mit einem mechanischen Mikromanipulator so an eine Endfläche des Wellenleiters justiert, dass die am anderen Ende des Wellenleiters ausgekoppelte Intensität (der geführten Mode) maximal wurde. Anschließend wurde sie mit an den Brechungsindex der Faser angepassten UV-Kleber ($n = 1,56$) F-UVE-61 der Firma Newport unter Beleuchtung einer Hg-Lampe fixiert. Nach dem Aushärten wurde die Faser noch aus Stabilitätsgründen mit einem weiteren Klebepunkt am Glasträger befestigt. Mit

der zweiten Faser am anderen Ende des Wellenleiters wurde analog verfahren.

Die Einkopplungseffizienz eines solchen gesamten Bauelements beträgt typischerweise ca. 10 %, d.h. 10% der in die erste Faser eingekoppelten Intensität kann am Ausgang der zweiten Faser detektiert werden. Möchte man diese erhöhen, bietet sich der Einsatz von so genannten Lensed Fibers an, also Fasern, an die statt der glatt abgeschnittenen Endfläche eine Mikrolinse angebracht ist. Hierdurch wird der aus der Faser austretende (divergierende) Strahl kollimiert. Durch Anwenden dieser Technik kann die Einkopplungseffizienz auf bis zu 40 % erhöht werden [43]. Eine weitere Erhöhung könnte durch Justage mit hochgenauen piezogetriebenen Mikromanipulatoren ermöglicht werden, mit denen idealerweise auch während des Klebeprozesses die geführte Intensität maximiert werden kann.

Das physikalische Limit der Einkopplungseffizienz ergibt sich aus dem Überlappintegral des aus der bzw. in die Faser eingekoppelten Modenprofil mit dem Profil der im Wellenleiter geführten Mode, sowie durch die Verluste bei Reflektion an der Kante des Kristalls, die durch den Brechungsindexunterschied zwischen der Glasfaser bzw. dem index-angepassten Kleber und dem Kristall verursacht werden [44].

Hiermit stehen Bauelemente zur Verfügung, mit denen die Evaneszenzfeldanregung erfolgen kann. Durch das Verkleben mit der Faser erfolgt das Einkoppeln des Lichts reproduzierbar, wobei sich das Bauelement durch komfortable Handhabbarkeit und hohe Stabilität auszeichnet.

Kapitel 5

Experimentelle Charakterisierung der evaneszenten Felder mit einem optischen Rasternahfeldmikroskop (SNOM)

Eine geeignete Messmethode zur detaillierten Untersuchung der evaneszenten Intensitätsverteilung der in den hergestellten LiNbO_3 -Wellenleitern geführten Moden steht mit dem sogenannten SNOM (engl.: Scanning Near-Field Optical Microscope = Optisches Raster-Nahfeldmikroskop) im Kollektionsmodus zur Verfügung. Es wurde 1984 von Pohl erfunden [45], in zahlreichen Forschergruppen weiterentwickelt [46–48] und zu verschiedensten Untersuchungen in einer Vielzahl von Forschungsgebieten von Mikroelektronik bis Biomedizin verwendet [49–52]. Beim SNOM-Verfahren wird die Oberfläche der Probe mit einer angespitzten Glasfaser abgerastert, wobei Licht je nach Modus aus- oder eingekoppelt wird. Dieses optische Nahfeld-Verfahren unterliegt nicht der Abbe'schen Auflösungsgrenze und ist somit für die Untersuchung optischer Felder im Subwellenlängenbereich geeignet.

Für die Untersuchungen stand ein im Institut für Angewandte Physik entwickeltes AFM (engl.: Atomic Force Microscope = Rasterkraftmikroskop) zur Verfügung, das speziell für die in dieser Arbeit geforderten Messaufgaben im Rahmen einer Diplomarbeit [53] zu einem SNOM weiterentwickelt wurde. Verschiedene spezifische Parameter wurden so angepasst, dass eine Charakterisierung der evaneszenten Felder über den Wellenleitern in drei Raumrichtungen durchgeführt werden konnte.

Im folgenden Kapitel wird die generelle Funktionsweise des SNOM beschrieben und es wird ein Überblick über die gebräuchlichsten Klassen der Rasternahfeldmikroskope vermittelt. Die Theorie des der SNOM-Technik zu-

grunde liegenden Effekts der frustrierten Totalreflexion wird im Rahmen dieses Kapitels nur kurz angesprochen, sie wurde detailliert in Abschnitt 2.2.1 behandelt. Anschließend wird der verwendete Messaufbau vorgestellt und charakterisiert. Hierbei wird insbesondere auf die relevanten Messungen für die Kalibrierung des Systems eingegangen.

Den Hauptteil dieses Kapitels stellen die durchgeführten Untersuchungen der evaneszenten Felder über den Wellenleitern dar. Charakterisiert wurden Felder über unbeschichteten Bereichen des Wellenleiters in LiNbO_3 sowie über mit einem hochbrechenden TiO_2 -Film beschichteten Bereichen, die zu einer Erhöhung der Feldintensität an der Grenzfläche zwischen dem Kristall und dem umgebenden Medium (hier Luft) führt. Dies konnte theoretisch bestätigt und im Rahmen dieser Arbeit zum ersten Mal experimentell mit der SNOM-Methode nachgewiesen werden [16,17].

5.1 Funktionsweise und Techniken des SNOM

Das optische Rasternahfeldmikroskop gehört zur Familie der Rastersondenmikroskope (engl.: Scanning Probe Microscope, SPM), zu denen beispielsweise auch das Rastertunnelmikroskop (STM) oder Rasterkraftmikroskop (engl.: Scanning Force Microscope, SFM) gehören. All diesen Mikroskopen ist gemein, dass sie mittels einer Sonde die Oberfläche der zu untersuchenden Probe abrastern und dabei in regelmäßigen Abständen Messwerte einlesen, aus denen später ein Bild von der gescannten Oberfläche erzeugt wird, wie z.B. von der Topologie der Oberfläche. Die Besonderheit des SNOM liegt in der Messung optischer Signale, was es sehr attraktiv für Anwendungen in der Chemie und Biologie macht, wie z.B. für Fluoreszenzmessungen. Durch die Verwendung von Sonden mit sehr kleinen Spitzen können mit Rastersondenmikroskopen Auflösungen bis in den atomaren Bereich ($\approx 0,1 \text{ nm}$) erreicht werden, beim SNOM ist die Auflösung jedoch um mehr als zwei Größenordnungen geringer. Dennoch unterliegt dieses Verfahren nicht der Abbe'schen Auflösungsgrenze, wie sie z.B. für klassische Lichtmikroskope gilt [54]. Das Auflösungsvermögen Δx klassischer Lichtmikroskope ist (beugungs-)begrenzt und kann nicht kleiner als die halbe Wellenlänge λ des verwendeten Lichts werden:

$$\Delta x \approx \frac{\lambda}{2} \quad (5.1)$$

Um diese beugungsbegrenzte Auflösung von $\lambda/2$ zu überwinden, beschrieb Syngé bereits 1928 ein Mikroskop, das in den Hauptmerkmalen mit heutigen SNOMs übereinstimmt [55]. Das grundlegende Prinzip liegt in der Ver-

wendung einer Mikroapertur oder dielektrischen Spitze als Lichtquelle oder Detektor und in der gegenseitigen Beeinflussung der Spitze und der Probe in ihrem optischen Nahfeld. Sowohl der Aperturdurchmesser der Spitze als auch der Abstand zwischen Spitze und Probe sind dabei kleiner als die halbe Wellenlänge des verwendeten Lichts und somit unter der Beugungsgrenze.

Modi

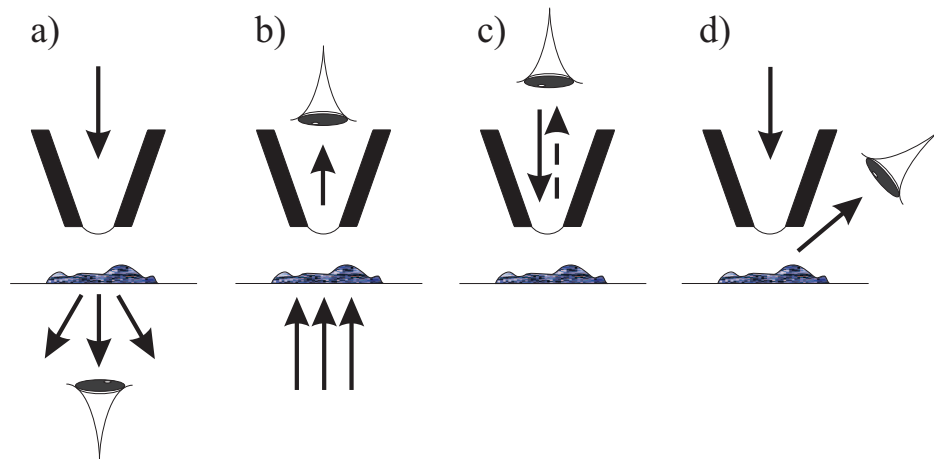


Abbildung 5.1: Transmissions-SNOM: a) Beleuchtung durch die Sonde, b) Detektion durch die Sonde. Reflexions-SNOM: c) Beleuchtung und Detektion durch Sonde, d) Beleuchtung durch Sonde und Detektion im Fernfeld.

In Abbildung 5.1 sind die gängigsten SNOM-Modi dargestellt. Bei durchsichtigen Proben kann das SNOM in Transmission betrieben werden. Dabei dient im Beleuchtungsmodus (Abb. 5.1 a) die dielektrische Sonde als Lichtquelle und das transmittierte Licht wird hinter der Probe mit gewöhnlicher Linsenoptik auf einen Photodetektor, in der Regel ein Photomultiplier oder eine Avalanche Photodiode, geleitet. Im Kollektionsmodus (Abb. 5.1 b) verhält es sich gerade umgekehrt. (Dieser Modus wurde in den Experimenten verwendet.) Hierbei wird die Probe durch eine zweite Quelle beleuchtet. Die Sonde dient als Detektor des transmittierten Lichts und leitet das gesammelte Licht z.B. über eine Glasfaser zu einem Photodetektor weiter. Ist die Probe undurchsichtig, kann das SNOM nur in Reflexion betrieben werden. Hierbei wird die Probe durch das Nahfeld der Sonde beleuchtet und das reflektierte Licht entweder durch die Sonde (Abb. 5.1 c) oder im Fernfeld (Abb. 5.1 d) detektiert.

Sonden

Es gibt unterschiedliche Systeme, die diese Interaktion zwischen Sonden-
spitze und Probe verwirklichen. Sie können grob in drei Klassen eingeteilt
werden: abgeschirmte, unabgeschirmte und aperturlose Sonden. Die ersten
beiden Fälle sind schematisch in der Abbildung 5.2 dargestellt.

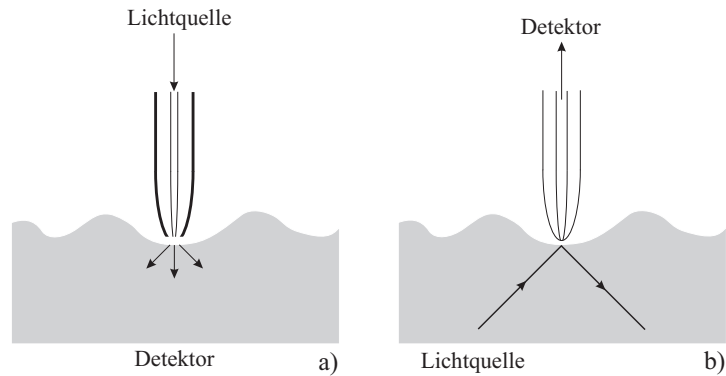


Abbildung 5.2: Prinzipielle Darstellung eines a) Mikroapertur-SNOM mit beschichteter Sonde und b) Rasterphotonentunnelmikroskop (PSTM) mit unbeschichteter Sonde

Bei der Mikroapertur-Mikroskopie dient eine kleine Apertur ($< \lambda/2$) als Lichtquelle oder Detektor. Dies sind meist verjüngte Glasfasern, die mit einer aufgedampften Metallschicht (meist Aluminium) verkleidet sind und an ihrer Spitze eine kleine Öffnung haben (vgl. Abbildung 5.2 oder 5.1).

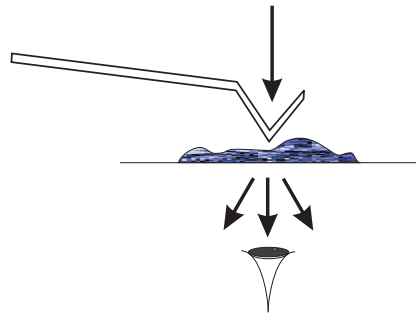


Abbildung 5.3: Transmissions-SNOM im Beleuchtungsmodus mit Cantilever-sonde

In den letzten Jahren haben sich insbesondere im Transmissionsmodus neben der Faser auch Cantilever mit einer Apertur als Sonde etabliert (vgl. Abb. 5.3 und Abb. 5.4). Der SNOM-Cantilever besteht aus einem Hebel,

an dessen Ende sich meist eine pyramidale, aluminiumverkleidete Spitze mit Apertur befindet. In dem in den Experimenten verwendeten Kollektionsmodus erwies sich diese Sondenform als nachteilig, da das eingekoppelte Licht über eine in die Messapertur integrierte Freistrahloptik auf einen hochempfindlichen Detektor abgebildet werden muss.

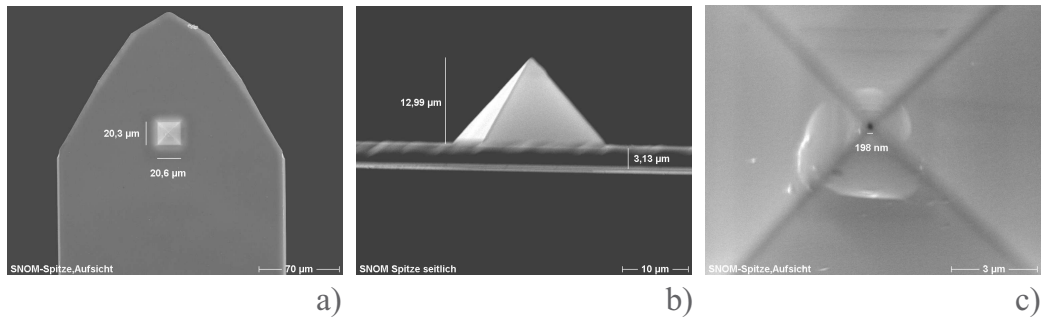


Abbildung 5.4: Rasterelektronenmikroskopaufnahme eines SNOM-Cantilevers: a) Unteransicht des Cantilevers mit Spitze, b) Seitenansicht der Spitze, c) vergrößerte Aufsicht der Spitze mit 198 nm Apertur

Eine andere Klasse von Rasternahfeldmikroskopen benutzt dielektrische Sonden, die nicht metallbeschichtet sind. Ein solches SNOM wurde erstmals 1989 von Reddick et al. [56] vorgestellt, welches er „Photon Scanning Tunneling Microscope“ (PSTM, engl. für Rasterphotonentunnelmikroskop) nannte, da es auf dem Effekt des Photonentunnels beruht. Andere Forschergruppen gaben ihm Namen wie „Scanning Tunneling Optical Microscope“ (STOM, engl. für optisches Rastertunnelmikroskop) [48] oder „Evanescent Field Optical Microscope“ (EFOM, engl. für optisches Evaneszenzfeldmikroskop) [57]. Trotz historischer Namensgebungen und dem Bedürfnis verschiedener Forschergruppen, bestimmte Eigenschaften des PSTM/STOM/EFOM hervorzuheben, wird in der Arbeit die Nomenklatur SNOM gebraucht, da es sich um ein Rastersondenmikroskop handelt, dessen dielektrische Spitze im Nahfeld optische Wechselwirkungen eingeht.

Besonderheiten des verwendeten Messinstruments

Die Hauptaufgabe des hier beschriebenen SNOM ist die Untersuchung evaneszenter Felder und deren Messung. Hierbei wird eine dielektrische Sonde (meist eine Single-Mode-Glasfaser) über das evaneszente Feld einer Probe gerastert. Das Einkoppeln des evaneszenten Feldes in die Glasfaserspitze basiert auf dem Effekt der frustrierten Totalreflexion, dessen mathematische

Beschreibung in Abschnitt Kap. 2.2.1 gegeben ist.

Durch die frustrierte Totalreflexion koppelt ein Teil des evaneszenten Feldes in die Faser und wird auf einen Detektor geleitet. Diese Konfiguration des SNOM mit einer unbeschichteten Glasfasersonde wurde aufgebaut, charakterisiert und für Messungen verwendet.

Beim in diesen Messungen verwendeten Scanmodus mit konstanter Höhe bewegt sich die Sonde über die Probe, wobei der Abstand zwischen beiden gleich bleibt. Damit können Änderungen des evaneszenten Feldes bzw. des mit der Sonde aufgenommenen optischen Signals entlang der Oberfläche gemessen werden. Durch die Höhendetektion kann auch eine gleichzeitig topologische Aufnahme der Probe erstellt werden.

Anders als im Apertur-SNOM kann das Auflösungsvermögen nicht einfach über den Aperturdurchmesser der Metallschicht an der Spitze abgeschätzt werden [58]. Vielmehr stellt hierbei die gesamte Spitze die Apertur dar, so dass das laterale Auflösungsvermögen durch den Kurvenradius bestimmt wird [56, 59]. In axialer Richtung, also senkrecht zur Oberfläche, ist das exponentielle Verhalten des evaneszenten Feldes für eine hohe Auflösung verantwortlich und die Auflösung ist deswegen meist durch (das höhere) Detektorrauschen begrenzt. Somit können mit dem SNOM laterale und axiale Auflösungen von etwa $\lambda/10$ und $\lambda/100$ erreicht werden [60].

Für das Auflösungsvermögen spielt aber neben der Form der Sondenspitze auch die Art der verwendeten Glasfaser eine entscheidende Rolle. Zwar sammeln Multi-Mode-Fasern durch ihre hohe numerische Apertur im Vergleich zu Single-Mode-Fasern viel Licht und liefern damit eine höhere Intensität, dafür aber haben Single-Mode-Fasern eine bessere Auflösung in lateraler wie auch axialer Richtung, weshalb letztere für die Messungen eingesetzt wurden.

Problematisch bei der Messung sind Streu- und Interferenzeffekte durch die Probenoberfläche. Sie beeinflussen die Messung, da die Faserspitze keine Metallschicht besitzt, die sie vor fremdem (Streu-)Licht schützt. Das SNOM kann nicht zwischen propagierender und evaneszenter Welle unterscheiden, da auch Licht in die Faser koppelt, wenn sie direkt bestrahlt wird. Ein Unterschied zwischen den beiden Wellenarten kann durch einen ausgedehnten Scanprozess erfolgen, bei dem auch die Höhenabhängigkeit des Lichts gemessen wird. Im Gegensatz zum Streulicht ist das evaneszente Feld wegen seines charakteristisch exponentiellen Abklingverhaltens nur in der Grenzschicht an der Oberfläche der Probe detektierbar [49].

Aus diesem Grund sind für gute Messergebnisse Proben mit rauen Oberflächen, die zu propagierenden Wellen führen können, sowie Streuzentren in oder auf der Probe zu vermeiden. Ebenfalls sollte die Sonde möglichst nahe an der Oberfläche (im Nahfeld) geführt werden, da bei größerem Abstand

sogenannte Sekundärquellen, die aus Beugungsmustern des an der Probe gestreuten Feldes entstehen, die Messung verfälschen und die lokale Struktur der Probe nicht getreu wiedergeben [59, 61].

Im Gegensatz zum Apertur-SNOM ist das im Rahmen der Arbeit aufgebaute SNOM nur im Kollektionsmodus betreibbar, da im Beleuchtungsmodus wegen der fehlenden Metallbeschichtung schon vor der Spitze Licht seitlich abgestrahlt wird. Auch der Betrieb in Reflexion ist wegen der nicht vorhandenen abschirmenden Metallschicht und der direkten Beleuchtung der Faser durch die Lichtquelle und den entstehenden Oberflächenreflexen nicht möglich.

Trotz dieser Nachteile wird aus folgenden Gründen eine unabgeschirmte Fasersonde für die Messung evaneszenter Felder benutzt:

1. Der Transmissionskoeffizient wird durch eine Metallbeschichtung um einen weiteren Faktor von 10 - 100 reduziert, was bei dem bereits schwachen evaneszenten Feldsignal eine Verschlechterung der Messergebnisse bedeutet [56].
2. Das richtige Aufdampfen einer Metallschicht auf die Fasersonde ist ein aufwändiger und problematischer Arbeitsprozess.
3. Auch mit einem Apertur-SNOM würden die besten Ergebnisse für die Messung des evaneszenten Feldes nur dann erzielt werden, wenn die Probenoberfläche keine propagierenden Wellen abstrahlt.
4. Für die in Kapitel 2 beschriebenen Beispiele treten theoretisch und idealerweise keine propagierenden oder streuenden Wellen auf, sondern nur evaneszente.

5.2 Experimenteller Aufbau des SNOM

Um die Charakterisierung der evaneszenten Felder durchführen zu können, wurde ein optisches Rasternahfeldmikroskop aufgebaut. Als Grundbau diente ein am Institut entwickeltes Rasterkraftmikroskop (AFM), dessen Mechanik zur Positionierung genutzt und erweitert werden konnte. Weiterhin wurde die Optik zur Detektion der evaneszenten Felder integriert [53].

Im folgenden Abschnitt wird der Aufbau des SNOM mit dessen Komponenten beschrieben. Nach der in der Literatur häufig verwendeten und in Abschnitt 5.1 angesprochenen Kategorisierung handelt es sich bei dem verwendeten Messaufbau um ein SNOM mit einer unbeschichteten Fasersonde, auch PSTM genannt.

Im Wesentlichen lassen sich Aufbau und Funktionsweise in vier Bereiche untergliedern:

- Mechanik (zur Positionierung zum Abrastern der Probe in x,y,z-Richtung)
- Abstandsdetektion (mittels Tuning Fork-Verfahren)
- Optisches Signal (Einkoppeln des evaneszenten Feldes in eine angespitzte Glasfaser)
- Elektronische Datenerfassung und -auswertung (zur Bildgebung)

Zunächst wird auf die Mechanik zur Positionierung eingegangen. Das AFM besitzt einen Grob- sowie einen Feintrieb, mit dem die am Messkopf befindliche Glasfasersonde über der Probe positioniert wird, bzw. mit dem die Scanbewegung vollzogen wird. Die Verstellwege der Linearaktuatoren des Grobtriebs sowie die des Feintriebs, der durch einen Piezopositioniertisch realisiert wurde, sind von Hersteller geeicht. Ein Schwingquarz stellt die mechanische Verbindung zwischen Glasfaser und Messkopf her und wird über einen am Messkopf befindlichen Piezokristall getrieben. Die Funktion des Schwingquarzes liegt in der Bestimmung des Kontaktpunkts (Nullpunkts) von Glasfasersonde und Probe. Hierzu wird das Resonanzverhalten des Schwingquarzes elektronisch ausgewertet. Dieses Signal, das bei Annähern der mit dem Schwingquarz verbundenen Faser an die Oberfläche der Probe gedämpft wird, wird ebenfalls zur Abstandsdetektion verwendet. So wird die Höhe zwischen Sonde und Oberfläche bestimmt und bei einem lateralen Scanvorgang kann durch das Rückkopplungssignal die Höhe konstant gehalten werden.

Zunächst wird im folgenden Abschnitt ein Überblick über die Signalwege im Gesamtsystem gegeben. Im daran anschließenden Abschnitt 5.2.2 wird die mechanische Konstruktion detailliert erläutert. Auf das charakteristische Verhalten des Systems, das über das elektrische Signal des Schwingquarzes bestimmt werden kann, wird ausführlich im anschließenden Abschnitt 5.2.5 eingegangen. Die Lichtdetektion der gemessenen evaneszenten Feldintensität erfolgt über eine angespitzte Glasfaser, deren Signal von einem Photomultiplier erfasst wird. Eingegangen wird zunächst auf die Integration in das System, ein weiterer kurzer Abschnitt befasst sich mit der Herstellung der Faser Spitze. Im letzten Abschnitt wird kurz die Datenerfassung und -auswertung sowie die computergestützte Ansteuerung der Komponenten beschrieben.

5.2.1 Signalwege

Ein Schema des Aufbaus und der Signalverarbeitung zeigt Abb. 5.5. Darin sind die Wege der einzelnen Signale mit Pfeilen gekennzeichnet. Der Messkopf ist mit dem Grobtrieb verbunden, der diesen bewegt und über der Probe positioniert. An der Unterseite des Messkopfes ist ein piezoelektrischer Kristall eingebaut, der vom Frequenzgenerator durch elektrische Wechselspannung in Schwingung versetzt wird und der über einen Magneten (hier nicht gezeigt) mit dem Schwingquarz verbunden ist. Durch die Anregung des Piezos wird auch der Quarz zum Schwingen angeregt und erzeugt ein elektrisches Signal, das über einen Vorverstärker verstärkt und im Lock-In Verstärker mit dem Signal des Frequenzgenerators verglichen wird. Das so erhaltene Signal wird zur Höhendetektion verwendet. An einem Arm des Schwingquarzes ist die Glasfasersonde befestigt, die das optische Signal der Probe aufnimmt. Das gesammelte Licht wird über eine Glasfaser in einen Photomultiplier geleitet und dort detektiert. Dieser ist, wie auch der Lock-In Verstärker, mit einem Computer verbunden, der die Messdaten einliest, speichert und auswertet. Die Probe liegt auf einem 3-Achsen-Piezopositioniertisch, der für den Scanvorgang durch den Computer angesteuert wird und dessen Position ausgelesen werden kann. Der Computer wird auch als Feedback-Controller eingesetzt, der durch Auswerten des Lock-In Signals die Piezotischhöhe bei einem lateralen Scan regelt.

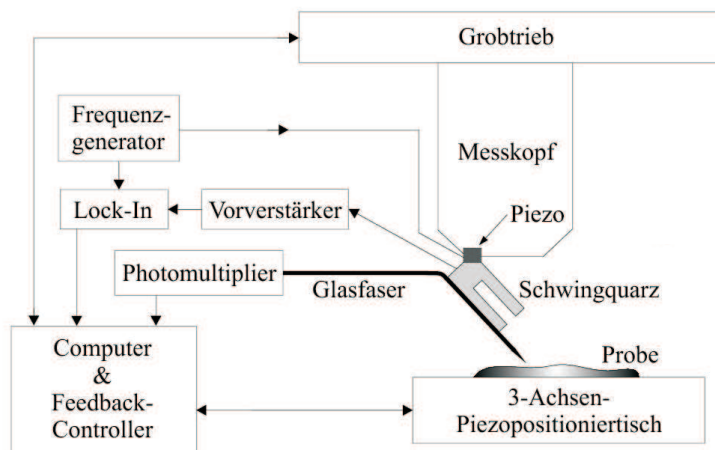


Abbildung 5.5: Schematischer Aufbau der Signalwege

5.2.2 Mechanik / Bewegung

Abbildung 5.6 zeigt ein Foto des mechanischen Aufbaus des SNOM. Er lässt sich in zwei unabhängige Bewegungseinheiten unterteilen. Zum einen gibt es einen „Grobtrieb“ (1, 2), der den Messkopf (4) trägt, an dem wiederum die Fasersonde befestigt ist, und zum anderen einen „Feintrieb“ (3), ein Nanopositioniersystem, auf dem die zu untersuchende Probe liegt. Beide Einheiten werden in den folgenden Abschnitten näher beschrieben.

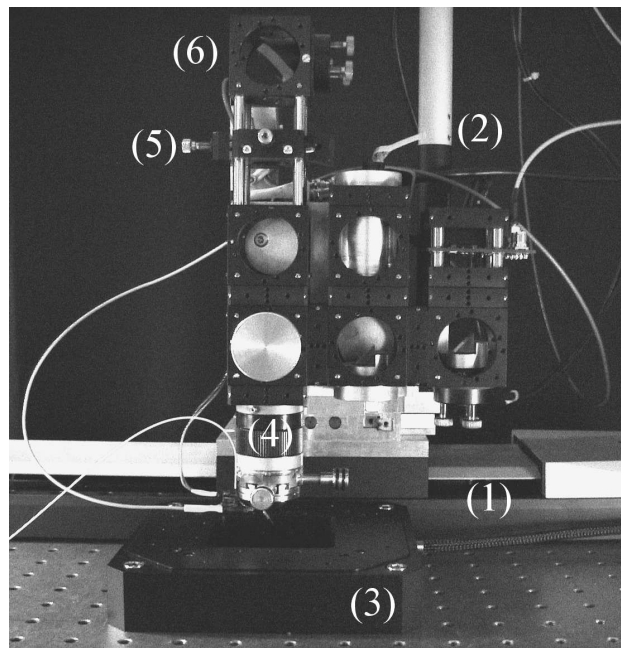


Abbildung 5.6: mechanischer Aufbau des SNOM: (1) Mikrostelltisch in x-Richtung, (2) Linearaktuator in z-Richtung, (3) Piezotisch, (4) Messkopf mit Schwingquarz und Fasersonde, (5) Linse und (6) Spiegel der optischen Einstellhilfe

Dieser Aufbau befindet sich auf einem schwingungsgedämpften Tisch, um das SNOM von Erschütterungen und Schwingungen durch die Umgebung zu isolieren. Dies und die stabile Konstruktion der Mechanik reichen aus, um präzise Messungen mit Auflösung bis in den Bereich weniger nm durchzuführen. Dadurch ist weder erforderlich, das System zusätzlich zu evakuieren noch die Proben speziell zu präparieren, um sie zu untersuchen.

Grobtrieb

Die Elemente des Grobtriebs sind in Abb. 5.6 im Hintergrund zu sehen. Er besteht aus einem Hochlast-Mikrostelltisch mit Kugelumlauflführungen M-531.PD der Firma Physik Instrumente (1) für die Bewegung in x-Richtung und zwei hochauflösenden Linearaktuatoren M-230.25 (ebenfalls von PI) für die Bewegung in y und z, wobei der in der Abbildung mit (2) gekennzeichnete den Aufbau in z-Richtung bewegt. Die Elemente des Grobtriebs sind über Elemente des Mikrobanksystems der Firma Linos stabil miteinander verbunden. An diesen befindet sich der Messkopf (4), an dem die Fasersonde befestigt ist.

In Tabelle 5.1 sind die charakteristischen Daten des Grobtriebs (laut Hersteller) zusammengefasst¹².

Die großen Stellwege in allen drei Achsen ermöglichen ein flexibles Arbeiten mit unterschiedlichen Probengeometrien. Die Messeinheit mit Messkopf kann zunächst vollständig neben das Nanopositioniersystem (3) verschoben werden, was ein leichteres Aufbringen der Probe auf dem Nanopositioniertisch ermöglicht, und anschließend mikrometergenau über der Probe positioniert werden.

Achse	x	y	z
max. Stellbereich	306 mm	25 mm	25 mm
kleinste Schrittweite	0,5 μm	0,05 μm	0,05 μm
max. Geschwindigkeit	125 mm/s	1,5 mm/s	1,5 mm/s
Umkehrspiel	unbekannt	2 μm	2 μm

Tabelle 5.1: Daten des Grobtriebs

Die Ansteuerung der drei Achsen erfolgt über eine DC-Motorsteuerung C-848 von PI³. Diese ist über eine IEEE 488 (GBIB)-Schnittstelle mit einem Computer verbunden, über den ebenfalls die Datenerfassung erfolgt.

Auf Grund der geringen Auflösung und eines Umkehrspiels von 2 μm der Linearaktuatoren wird zur genauen Positionierung der Probe der Feintrieb statt des Grobtriebs verwendet. Ein weiterer Vorteil dieses Verfahrens besteht darin, dass mit dieser Technik keine Erschütterung der Sonde durch die Bewegung des Sondenträgers die Messung beeinflusst.

¹s. Datenblatt: Physik Instrumente, M 531, Mikrostelltisch

²s. Datenblatt: Physik Instrumente, M 230, hochauflösender Linearaktor

³s. Datenblatt: Physik Instrumente, C-848, DC- Motorsteuerung, 2007

Feintrieb

Als Feintrieb (3) und damit als eigentliche Bewegungseinheit des Mikroskops wurde ein 3-Achsen-Nanopositioniertisch P-517.3CL mit Piezoantrieb von PI (siehe Abb. 5.6) benutzt. Dieser ist mit einem Controllermodule der Firma WiTec verbunden, das zum einen die nötige Hochspannung für die Piezoaktuatoren liefert, und zum anderen über den Computer angesteuert werden kann.

Achse	x	y	z
max. Stellbereich	100 μm	100 μm	20 μm
kleinste Schrittweite	1 nm	1 nm	0,1 nm

Tabelle 5.2: Daten des Feintriebs

In Tabelle 5.2 sind die charakteristischen Daten des Feintriebs (laut Hersteller) zusammengefasst⁴. Mit seiner hohen Auflösung von 1 nm in x- und y-Richtung bzw. 0,1 nm in z-Richtung besitzt der Piezotisch optimale Voraussetzungen für die genaue Positionierung der Probe während des Scanbetriebs.

Optische Einstellhilfe

In den Messkopf ist eine Linse integriert, mit der beobachtet werden kann, wo sich die Sonde gerade über der Probe befindet. Mit dieser Linse wird die Oberfläche der Probe auf den CCD-Chip einer Videokamera abgebildet. Dazu kann der Abstand von Linse zur Probenoberfläche variiert und justiert werden. Zusätzlich kann mit zwei Schrauben der untere Teil des Messkopfes und damit die Fasersonde in x-y-Richtung verschoben werden, um diese im bzw. in das Sichtfeld des Linsensystems zu positionieren. Dieses System hat eine laterale Auflösung von $< 1 \mu\text{m}$.

5.2.3 Abstandsdetektion

Ein präziser Mechanismus zur Abstandsdetektion der Glasfasersonde zur Oberfläche der Probe wird aus zwei Gründen benötigt: Um den Kontaktpunkt als Referenzpunkt festzulegen, wird er zunächst während der Kalibration des Systems für die Annäherung der Sonde an die Oberfläche gebraucht. Dieser Punkt stellt gleichzeitig den Nullpunkt für z-Scans senkrecht zur Oberfläche dar. Weiterhin ist die Abstandsdetektion wichtig für laterale Scans parallel zur Oberfläche um einen stets konstanten Abstand zu gewährleisten.

⁴s. Datenblatt: Physik Instrumente, P 517, Nanostelltisch mit Piezoantrieb

Realisiert wird die Abstandsdetektion mit Hilfe eines kommerziellen Uhrenschwingquarzes. Dieser wird durch einen Piezokristall nahe der Resonanzfrequenz zur Schwingung angeregt und sein elektrisches Signal wird über einen Lock-In Verstärker ausgelesen. Bei Annäherung an eine Oberfläche wird die Schwingungsamplitude des Quarzes gedämpft, wobei sich Amplitude und Phase des elektrischen Signals in typischer Weise ändern, s. Kap. 5.3.2. Diese Technik ist etabliert und wird in einer Vielzahl von SNOM-Geräten verwendet [62–64].

Im Folgenden werden die einzelnen Komponenten der Abstandsdetektion näher erläutert und ihr Zusammenwirken dargestellt.

Schwingquarz

Im Aufbau wird ein handelsüblicher Uhrenschwingquarz der Firma AEL verwendet, dessen Resonanzfrequenz bei 32768 ($= 2^{15}$) Hz liegt. Nach Entfernen des schützenden Metallgehäuses misst der freigelegte Schwingquarz eine Länge von ca. 4,5 mm und hat die Form einer Stimmgabel (engl.: Tuning Fork, TF). Der Schwingquarz besteht aus einem piezoelektrischen Quarzkristallplättchen, das an seinen Enden metallisiert und kontaktiert ist. Eine von außen angelegte Wechselspannung versetzt auf Grund des piezoelektrischen Effekts die Arme der Stimmgabel in Schwingung. Das elektrische Signal kann an den Anschlussdrähten der Gabel gemessen werden. Es entspricht dem eines elektrischen Schwingkreises und besitzt ein charakteristisches Resonanzverhalten, was in Abschnitt 5.3.2 im Detail diskutiert wird.

Messkopf mit Piezokristall

Die mechanische Schwingungsanregung der Stimmgabel geschieht mittels eines Piezokristalls, der über einen im unteren Teil des Messkopfes befindlichen Magneten (vgl. Abb. 5.7) mit ihm verbunden ist. Um einen ständigen Kontakt zwischen der Piezo-Magnet-Einheit und dem Schwingquarz zu erreichen, wird der Schwingquarz mit seinen Anschlussdrähten (elektrisch isoliert) auf einen Metallring aufgeklebt, wodurch mitunter die Stabilität des Systems erhöht wird. Zudem dient eine Steckverbindung einer weiteren Stabilisierung des Schwingquarzes, in der auch die Stecker für die elektrischen Signale implementiert sind.

Es ist anzumerken, dass die Arme des Schwingquarzes gegeneinander schwingen und eine optimale mechanische Anregung ebenfalls in Richtung Schwingungsachse zu erfolgen hat. Aufgrund der Geometrie des Aufbaus liegen die Arme unter einem Winkel von ca. 30° zur Ausdehnungsrichtung des Piezokristalls (in z-Richtung des Systems). Die Auslenkung des Piezos be-

trägt ca. 10 nm. Aufgrund der geometrischen Verhältnisse ist die Anregung des Quarzes nicht maximal, was aber die Funktionsweise nicht beschränkt.

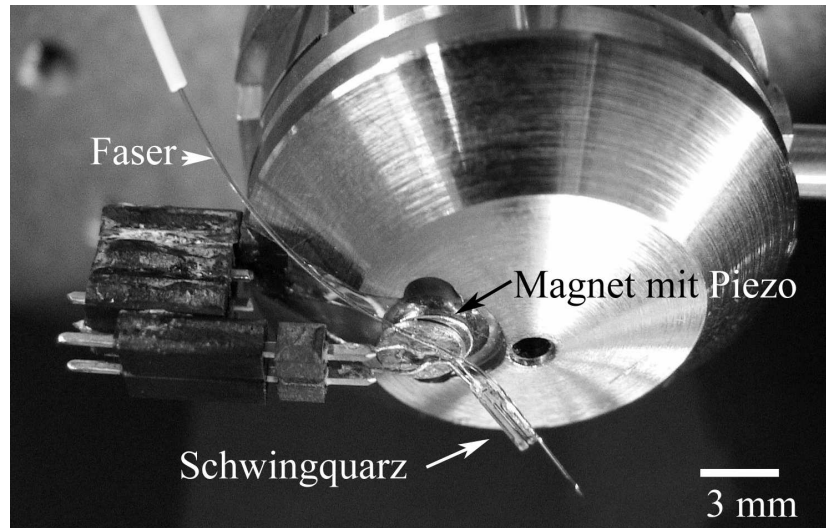


Abbildung 5.7: Schwingquarz-Faser-System am Magnet des Messkopfes

Elektrische Signalverarbeitung

Der Piezokristall im Messkopf wird durch eine sinusförmige Wechselspannung nahe der Resonanzfrequenz des Schwingquarz-Faser-Systems angetrieben. Das durch den Schwingquarz entstehende elektrische Signal wird elektrisch 74074-fach vorverstärkt von einem Lock-In Verstärker (Modell: 5210 von Princeton Applied Research) mit dem Referenzsignal des Frequenzgenerators verglichen. Daraus können Amplitude und die Phasenlage des Schwingquarzsignals gegenüber dem Referenzsignal bestimmt werden. Wenn sich nun der Arm des Schwingquarzes einer Oberfläche annähert wird die Schwingung gedämpft. Das Amplitudensignal am Lock-In Verstärker sinkt und die Phasenverschiebung nimmt zu. Somit kann eine eindeutige (Abstands-) Position des Sensorkopfes zur Oberfläche bestimmt werden.

Schwingquarz-Faser-System

Beim SNOM funktioniert das Schwingquarz-Faser-System als Abstandsdetektor, bei dem eine angeklebte Fasersonde (je nach Messanwendung) den Kontakt mit der Oberfläche eingeht. Hierzu wird die Faser mit ihrem spitzen Ende an einem Arm des Schwingquarzes festgeklebt. Dies ist auch in Abb. 5.7 ersichtlich, wobei anzumerken ist, dass die für die SNOM-Messung verwendeten Fasern am unteren Arm der Stimmgabel befestigt wurden und ca. 1 mm

über das Ende der Stimmgabel hinausragten. Hierbei weisen die Faser und der Schwingquarz den gleichen Winkel zur Oberfläche auf. Die Faser kann dabei bis zu einigen Millimetern über den Quarzarm hinausragen, ohne dass die Schwingfähigkeit des Schwingquarz-Faser-Systems verloren geht. Der Winkel ist absichtlich nicht senkrecht zur Oberfläche gewählt, um ein Abbrechen der Fasersonde beim Kontakt mit der Oberfläche zu verhindern. (Er betrug etwa 30° zur Senkrechten.) In Kontakt mit der Oberfläche biegt sich die Faser und ist weiterhin verwendbar. Durch das Befestigen der Faser ergibt sich auch eine neue Resonanzfrequenz für das Schwingquarz-Faser-System, die je nach Systemeigenschaften etwas über oder unter der bisherigen liegt.

Wenn sich die im „Tapping-Mode“ betriebene schwingende Faser der Oberfläche nähert, wird die Amplitude des Systems gedämpft. Scherkräfte oder anziehende van-der-Waals-Kräfte können hierbei vernachlässigt werden. Das heißt, die Faser schlägt mit ihrer Spitze immer wieder auf die Oberfläche. Hierbei kommt es auch zu nichtlinearen Biegekräften in der Faser und ihrer Spitze [65]. Die genaue Untersuchung des Schwingungs- und Signalverhaltens des Schwingquarz-Faser-Systems wird im Abschnitt 5.2.5 behandelt.

Rückkopplungseinheit

Neben der erwähnten Abstandsdetektion, die bei Höhenscans in axialer Richtung wichtige Informationen liefert, kann die Information über die Schwingungsamplitude oder Phasenlage auch als Feedback-Signal genutzt werden, um laterale Scans zu realisieren. Hierzu wird ein PID-Regler⁵ verwendet, dem ein Amplitudensignalwert als Soll-Wert für den Scanvorgang vorgegeben wird. Durch automatische Änderung der Piezotischhöhe (z-Position) und damit des Abstandes zwischen Faserspitze und Oberfläche, versucht der Regler den Ist-Wert des Amplitudensignals auf den Soll-Wert einzustellen. Dadurch wird ein konstanter Abstand der Sonde zur Oberfläche während des lateralen Scans gewährleistet und die Voraussetzung für einen quantitativen Vergleich in einem lateralen Scan geschaffen. In den Experimenten wurde der PID-Regler digital über ein Softwareprogramm von LabVIEW realisiert. Es hat sich gezeigt, dass für eine gute Regelung der Proportional-Regler (P) ausreicht. Daher konnten Integrations- und Differentialregler auf Null gesetzt werden ($I=D=0$).

Durch das Verwenden des PID-Reglers und das Aufzeichnen der Piezotischhöhe während des Scanvorgangs kann neben der optischen auch eine topographische Darstellung der Oberfläche gewonnen werden. Die Auflösung

⁵Ein PID-Regler ist ein linearer Standard-Regler aus der Regelungstechnik. Die Buchstaben P, I und D stehen jeweils für „proportional“, „integral“ und „differential“ und bilden die drei möglichen Einstellgrößen, mit denen geregelt wird.

ist dabei durch den Radius der kugelförmigen Sondenspitze begrenzt. In axialer Richtung ist die Auflösung durch Schwankungen und Instabilitäten des Schwingquarzsignals (und durch das Rauschen des Piezotisches) beschränkt. Die hierzu durchgeführte experimentelle Bestimmung des Auflösungsvermögens wird ebenfalls im anschließenden Abschnitt 5.2.5 behandelt.

5.2.4 Lichtdetektion

Lichtdetektion bezeichnet das Einkoppeln des evaneszenten Feldes in die angespitzte Glasfaser sowie die Messung der Intensität dieses Lichts mit einem Photomultiplier.

Glasfaser

Im SNOM-Aufbau wurde eine Glasfaser (Single-Mode für $\lambda = 1310$ nm) mit einem Kerndurchmesser von $8,2\text{ }\mu\text{m}$ und einer numerischen Apertur von 0,14 verwendet, da damit das Lichtsignal höher als für eine Single-Mode-Faser für $\lambda = 532$ nm ist. Die Verwendung einer Multi-Mode-Faser mit $62,5\text{ }\mu\text{m}$ Kerndurchmesser hat sich als nachteilig erwiesen. Zwar wird ein höheres Lichtsignal detektiert, aber das System ist auch anfälliger für Streu- und Umgebungslicht. Zudem weist die Multi-Mode-Faser ein geringeres Auflösungsvermögen auf. Beide Fasertypen haben einen Claddingdurchmesser von $125\text{ }\mu\text{m}$.

Um die Ortsauflösung des Systems zu erhöhen, muss das Faserende angespitzt werden. Zur Herstellung einer solchen spitzen Fasersonde haben sich zwei Methoden etabliert: das chemische Ätzen mit Flußsäure⁶ [19] und das Erhitzen und Auseinanderziehen („Pullen“) einer Faser. Die im Experiment verwendeten Sonden wurden mit der Pull-Technik hergestellt. Hierbei wird die Faser an einer Stelle gezielt mit einem Lichtbogen (oder Laser) erhitzt und zugleich auseinander gezogen. Dadurch wird die Faser verjüngt und an der erhitzten Stelle durchtrennt. Die so erhaltene Fasersonde besitzt eine konische Form mit einer feinen Spitze.

Im Vergleich zur geätzten Sonde sind die Spitzen recht lang und haben kleinere Öffnungswinkel. Vorteilhaft an diesem einfachen Herstellungsverfahren ist, dass der Umgang mit gefährlichen Substanzen vermieden und eine nachbearbeitende Wirkung von ätzenden Flüssigkeiten ausgeschlossen werden kann. Zudem bildet das geschmolzene Glas auf Grund seiner Oberflächenspannung automatisch eine glatte Spitzenoberfläche. Zur Herstellung der Spitzen sind kommerzielle Systeme erhältlich, die Spitzen mit Radien

⁶Als Flußsäure wird die wässrige Lösung von Fluorwasserstoff (chemische Formel HF) bezeichnet.

von 50 nm erzeugen. Diese verwenden meist einen CO_2 -Laser, der die nötige Energie gezielt in der Faser deponiert. Aus Kostengründen verwendeten wir ein an unserem Institut vorhandenes thermisches Spleißgerät der Firma Siemens (Modell: S46999-M7-A10)⁷. Dieses Spleißgerät dient normalerweise dazu, zwei abgetrennte Glasfasern zu verbinden, kann aber auch im entgegengesetzten Modus verwendet werden um Fasern auseinander zu ziehen [66,67]. Auf diese Weise können Faserspitzen mit Radien von einigen Hundert Nanometern hergestellt werden.

Durch den großen Kurvenradius wird zwar die laterale Ortsauflösung verschlechtert, für Intensitätsmessungen hingegen erweist sich der größere Kurvenradius als vorteilhaft, da er zu einer höheren Lichtaufnahme führt. Abbildung 5.8 zeigt eine Rasterelektronenmikroskopaufnahme einer Faserspitze mit relativ großem Kurvenradius von ca. 800 nm.

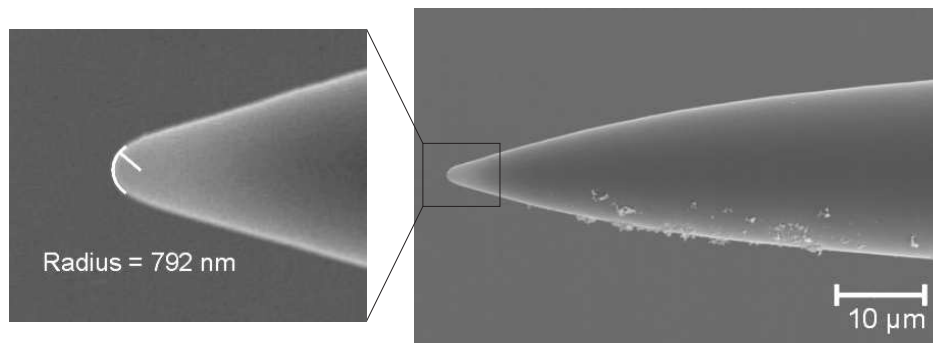


Abbildung 5.8: Rasterelektronenmikroskopaufnahme der Fasersondenspitze

Photodetektor

Das in der Faseronde aufgesammelte Licht propagiert in der Glasfaser zu einem Photodetektor, der das Lichtsignal in ein elektrisch messbares Signal umwandelt. Im Aufbau wurde ein Photomultiplier der Firma Hamamatsu (Modell: H5784-20)⁸ verwendet, der optisch vom Umgebungslicht abgeschirmt wurde. Zusätzlich bestand die Möglichkeit, einen Farbfilter zwischen Faser und Detektor einzubringen.

Der verwendete Photomultiplier hat einen Stromstärke-zu-Spannung Umwandlungsfaktor von $1 \text{ V}/\mu\text{A}$ und eine Frequenzbandbreite von Gleichspannung bis 20 kHz. Die Anodenstrahlungssensitivität liegt bei etwa $8,5 \text{ V/nW}$ bei einem eingestellten Photomultiplerverstärkungsfaktor von 10^5 und Licht der Wellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$. Über ein Netzteil für den Photomultiplier wird

⁷s. Betriebsanleitung: Siemens, thermisches Spleißgerät S46999-M7-A10, 1983

⁸s. Datenblatt: Hamamatsu Photonics K. K.: Photosensor H5784-20

durch Verändern der Kontrollspannung der Verstärkungsfaktor eingestellt und das detektierte Lichtsignal ausgelesen. Bei einer maximalen Kontrollspannung von 0,88 V wird eine Verstärkung von fast 10^6 erreicht. Das Netzteil wurde zusätzlich modifiziert um das Signal-zu-Rausch Verhältnis zu verbessern. Hierzu durchläuft das elektrische Signal einen 100fach-Verstärker (d.h. die Verstärkung im oben genannten Fall erhöht sich auf 10^8) und einen Tiefpassfilter, bevor es an den Ausgang des Netzteils gelangt.

5.2.5 Ansteuerung, Datenerfassung und -auswertung

Zur Bildgebung muss beim SNOM das Objekt mit der Sonde abgerastert werden, wobei die optischen Informationen, die während des Scanvorgangs gesammelt werden, zu einem Bild zusammengesetzt werden. Aus diesem Grund spielt die Datenerfassung und -auswertung sowie die Ansteuerung der Systemkomponenten während des Scans eine essentielle Rolle.

Zur Aufnahme und Digitalisierung der analog vorliegenden Messdaten sowie zur Steuerung der einzelnen Achsen der Positioniereinheiten wurde eine Datenerfassungskarte (Modell: NI PCI-6229) sowie eine GPIB-Karte der Firma National Instruments verwendet.

Mit der Datenerfassungskarte werden analoge Spannungssignale von -10 V bis +10 V ausgegeben und eingelesen. Drei analoge Ausgangskanäle sind mit dem Kontroller des Piezonanopositioniertisches (Feintrieb) verbunden, um damit seine drei Achsen zu bewegen. Die Höhe des Tisches (z-Position) wird über einen analogen Kanal eingelesen. Weitere Daten, die über die analogen Kanäle eingelesen werden, sind das Lichtsignal des Photomultipliers, das am Lock-In Verstärker anliegende Amplitudensignal des Schwingquarzes, sowie das Lichtsignal einer Photodiode zur Messung der Laserlichtleistung (optional) und das Signal eines weiteren Lock-In Verstärkers, der verwendet wird, wenn die Lichtquelle zur Signalverbesserung gechoppt wird.

Die GPIB-Karte wird zur Kommunikation der Rechneinheit mit der Motoransteuerung (C-848) des Grobtriebes, sowie dem Auslesen der Schwingquarzsignale (Amplitude und Phasenlage) am Lock-In Verstärker genutzt. Das Auslesen des Amplitudensignals über die GPIB-Karte hat den Vorteil, dass ein zusätzliches Verrauschen des Signals vermieden wird, da die Karte digital mit dem Lock-In kommuniziert und Datenpakete ausgetauscht werden. Weiterhin kann der Frequenzgenerator über die GPIB-Schnittstelle angesteuert werden, was für einen Frequenzscan sehr komfortabel ist, um die Resonanzkurve des Schwingquarz-Faser-Systems aufzuzeichnen.

Zur Ansteuerung der beiden PCI-Karten und Automatisierung der Vorgänge wurden Programme in der graphik-basierten Programmiersprache LabVIEW geschrieben. Hiermit konnten beispielsweise Ansteuerungen zum Ver-

fahren mit dem Grobtrieb, zur Resonanzkurvenaufnahme des Schwingquarzes, zur Annäherung der Sonde an die Oberfläche, zum Höhenscan in z-Richtung, die PID-Regelung zur Höhenkontrolle und ein 2D-Scan mit Höhenkontrolle realisiert werden.

5.3 Systemcharakterisierung des Messinstruments

Bei der Glasfasersonde handelt es sich um ein Verschleißteil und ihr Auswechseln hat eine Änderung des Resonanzverhaltens des Schwingquarz-Faser-Systems zur Folge. Da eine exakte Reproduktion der vorherigen Geometrie unmöglich ist, muss nach jedem Wechsel das SNOM neu kalibriert werden.

Weiterhin können im Gesamtsystem zeitliche Drifts elektrischer Signale oder auch mechanischer Komponenten (auch während der Messung) auftreten, die bekannt sein müssen, um eine Fehlinterpretation der Messergebnisse oder ein Zerstören des Systems durch falsche Ansteuerung zu vermeiden.

In den folgenden Abschnitten werden die charakteristischen Eigenschaften des Resonanzverhaltens des im SNOM zur Abstandsmessung verwendeten Schwingquarzes aufgezeigt. Beispiele für durchgeführte Kalibrationsmessungen und ihre Bedeutungen werden diskutiert.

5.3.1 Resonanzverhalten

Die Aufnahme einer Resonanzkurve des Schwingquarz-Faser-Systems ist zur Bestimmung einer geeigneten Frequenz erforderlich, mit der das System angetrieben werden muss. Hierzu wird am Frequenzgenerator bei fest eingestellter Amplitude der sinusförmigen Wechselspannung die Frequenz durchgescannt und das vom Lock-In Verstärker ausgegebene Signal der Amplitude und Phase aufgezeichnet. Aufgrund der Komplexität der Geometrie besitzt das System mehrere Resonanzfrequenzen, wie in Abbildung 5.9 zu erkennen ist. Die höchste Resonanz jedoch liegt in der Nähe der Eigenfrequenz des Schwingquarzes (32768 Hz). Es zeigt sich, dass diese Resonanzfrequenz je nach Geometrie des System sowohl kleiner als auch größer als die 32768 Hz sein kann, dass sie aber immer in der Umgebung liegt.

Eine charakteristische Größe des schwingenden Systems und der Resonanzkurve ist der Q-Faktor (Gütefaktor). Er ist definiert als das Verhältnis zwischen Resonanzfrequenz f_0 und der Halbwertsbreite Δf der Resonanzkurve:

$$Q = f_0 / \Delta f. \quad (5.2)$$

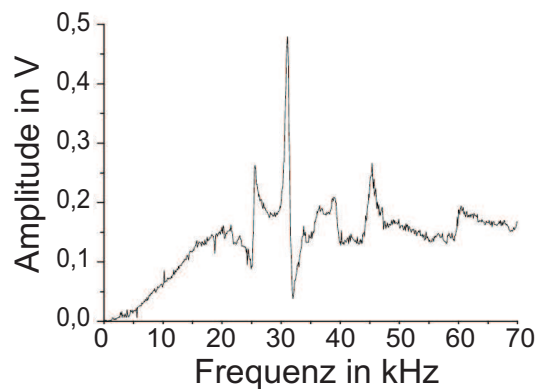


Abbildung 5.9: Resonanzverhalten des Schwingquarz-Faser-Systems

Je nach Geometrie des Systems wurden Q-Faktoren von bis zu 200 erreicht. Typische Q-Faktoren anderer Schwingquarz-Faser-Systeme liegen zwischen 30 und 800 [64, 68].

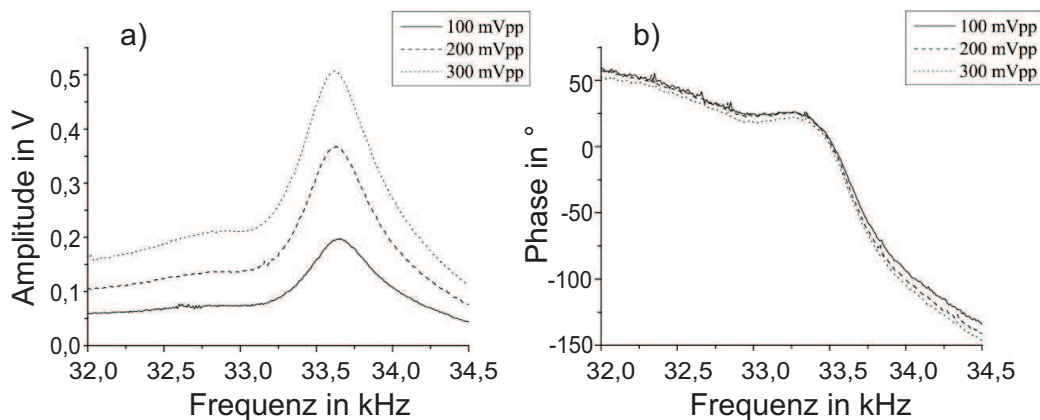


Abbildung 5.10: Resonanzkurven des Schwingquarz-Faser-Systems: a) Amplitude, b) Phasenverschiebung

Abbildung 5.10 zeigt die Resonanzkurven für verschiedene Anregungsamplituden. Die Unterschiede in der Phasenverschiebung sind gering, die Amplituden in den einzelnen Kurven hingegen nehmen mit stärkerer Anregung zu, d.h. das System schwingt stärker. Die Resonanzfrequenz f_0 verschiebt sich bei höherer Anregungsamplitude um wenige 10 Hz zu kleineren Werten. Der Q-Faktor bleibt etwa in der gleichen Größenordnung, für diese Messreihe beträgt er $Q = 42 - 47$.

Für die Messungen wurden immer Frequenzen f eingestellt, die etwas kleiner als die ermittelte Resonanzfrequenz f_0 waren, da sich beim Annähern bzw. dem Kontakt der Faser an bzw. mit der Oberfläche die Lage der Resonanz zu höheren Frequenzen verschiebt [65]. So konnte gewährleistet werden, dass das System immer auf einer Flanke der Resonanzkurve schwang. Damit wurde das Überschreiten des Resonanzmaximums vermieden, so dass eine eindeutige Zuordnung der Messwerte gewährleistet war.

5.3.2 Amplituden- und Phasenverhalten beim Annähern an die Oberfläche

Nachdem das Resonanzverhalten des frei schwingenden Schwingquarz-Faser-Systems bekannt ist, muss das Amplituden- und Phasenverhalten des schwingenden Systems charakterisiert werden, wenn es sich der Oberfläche annähert, diese berührt und wieder verlässt. Abbildung 5.11 zeigt eine typische Messkurve, bei der die am Lock-In Verstärker gemessene Amplitude und Phasenverschiebung des Schwingquarz-Faser-Systems gegen den Abstand zwischen Fasersonde und Oberfläche aufgetragen ist.

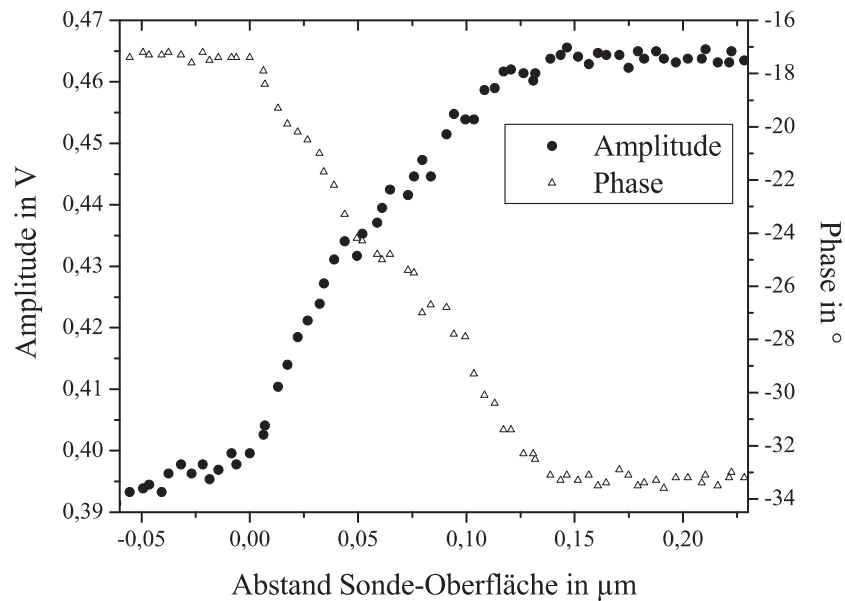


Abbildung 5.11: Annähern des Schwingquarz-Faser-Systems an die Oberfläche (Systemeigenschaften: Resonanzfrequenz = 30880 Hz, $Q = 20,6$, Anregungsamplitude = 200 mVpp, Anregungsfrequenz = 30820 Hz)

Bei der Annäherung der schwingenden Faser an die Oberfläche ist ein charakteristisches Dämpfungsverhalten des am Lock-In-Verstärker ausgewer-

teten elektrischen Signals der Tuning Fork zu beobachten. Bei Annäherung klopft die schwingende Faser immer wieder gegen die Oberfläche, wodurch auch die Bezeichnung dieses „Tapping“-Modus (engl.: to tap = klopfen) herührt. Zu diesem Zeitpunkt besteht noch kein permanenter Kontakt zwischen Sonde und Oberfläche. Mit kleiner werdendem Abstand verringert sich auch die Schwingungsamplitude bis zu dem Punkt, an dem sich die Sonde nicht mehr von der Oberfläche entfernt und sich im ständigen Kontakt mit ihr befindet. Dies wird als Nullpunkt der Abstandskurve definiert. Im Gegensatz zur Amplitude steigt die Phasenverschiebung mit abnehmendem Abstand an. Im Folgenden wird nicht weiter auf die Phasenverschiebung eingegangen, da zur Regelung das Amplitudensignal verwendet wurde.

Der gezeigte Amplitudenverlauf ist mit zunehmenden Abstand der Faser von der Oberfläche monoton steigend und über einen weiten Bereich linear. Der Abstand vom ersten Aufsetzen der Faser bis zum Nullpunkt reicht von 50 nm bis zu 700 nm, je nachdem welche Eigenschaften das System aufweist. So führt z.B. eine größere Anregungsamplitude des Frequenzgenerators zu einer Verbreiterung der Kurve, da die Auslenkung der Faserspitze größer ist und sie die Oberfläche früher berührt. Ein großer Q-Faktor hingegen erhöht die Kurvensteigung. Hinzu kommen weitere geringere Einflussfaktoren wie beispielsweise der Winkel zwischen Sonde und Oberfläche, die Anregungsfrequenz, die mechanischen Eigenschaften des Schwingquarzes, die Länge der über den Quarzarm überstehenden Faser, der Durchmesser und die Steifigkeit der Faser oder die Form der Sonde. Durch die über den Quarzarm überstehende Faser kann das System auch noch bei ständigem Kontakt zwischen Fasersonde und Oberfläche ein Schwingungsverhalten aufweisen, weshalb am Nullpunkt das Amplitudensignal nicht zwingend auf Null abfällt.

Die Höhenauflösung, die mit diesem System erzielt werden kann, richtet sich nach der Gesamtänderung und Stabilität des Amplitudensignals und nach der Breite der Signaländerung. Grundsätzlich liegt die Höhenauflösung im Bereich von wenigen Nanometern. In Abb. 5.11 ergibt sich durch ein Amplitudenrauschen von 1,5 mV und einer Amplitudenänderung von 64,8 mV über einen Bereich von $\Delta z = 140$ nm eine Auflösung von 3,2 nm.

Idealerweise folgt das Amplitudensignal beim Entfernen der Spitze von der Oberfläche dem gleichen Kurvenverlauf wie beim Annähern. Durch den Drift des Linearaktuators in z-Richtung (vgl. Kap. 5.3.4) oder durch Adhäsionskräfte, die z.B. durch einen Wasserfilm entstehen und die Faser erst später wieder von der Oberfläche lösen lassen [69], ist dies jedoch nicht immer gewährleistet. Zudem können andere Einflüsse wie beispielsweise die Abnutzung der Sonde die Amplitudenkurve nicht monoton verlaufen lassen.

Da der PID-Regler, der für das Halten eines konstanten Abstands zwischen Faser und Oberfläche während eines lateralen Scans verantwortlich

ist, nur in einem monotonen Kurvenbereich korrekt arbeiten kann, ist es sinnvoll, vor dem Scanprozess einen Höhenscan durchzuführen, um den Soll-Wert-Bereich zu bestimmen.

Ohne Berücksichtigung der vorangegangenen Punkte kann dennoch das Amplitudensignal zur automatisierten Annäherung der Sonde an die Oberfläche und Auffinden des Kontaktpunktes genutzt werden, da stets eine Dämpfung des Amplitudensignals am Kontaktpunkt auftritt.

5.3.3 Höhenauflösung mit dem PID-Regler

Um einen konstanten Abstand zwischen Sonde und Oberfläche bei lateralen ein- und zweidimensionalen Scans zu gewährleisten, wird ein PID-Regler eingesetzt. Hierbei kann das SNOM auch als Rasterkraftmikroskop eingesetzt werden, so dass bei einem Scan gleichzeitig eine Topologie der Oberfläche erstellt werden kann. Allerdings ist die laterale Auflösung durch den Durchmesser der verwendeten Fasersonde von mehreren Hundert Nanometern begrenzt. Die Auflösung in axialer Richtung wird durch das Auflösungsvermögen von PID-Regler und Schwingquarz-Faser-System bestimmt. Der Regler bezieht seine Informationen über das Amplitudensignal des Schwingquarzes und regelt dieses durch Änderung der Piezotischhöhe in z-Richtung. Die relevanten Parameter der PID-Regelung sind hierbei: der Proportionalitäts-, Integrations- und Differentiationsfaktor (P, I und D), das zeitliche Intervall der Regelung und die maximal erlaubte Tischhöhenänderung pro Regelzyklus.

Die Höhenauflösung wurde durch einen Querscan über ein Kalibrierungsgitter (Modell: TGZ01 der Firma NT-MDT) bestimmt (siehe Abb. 5.12). Das stufenförmige Siliziumgitter hatte eine Stufenhöhe von 22 nm und eine Gitterkonstante von 3 μm .

Abbildung 5.12 zeigt das Ergebnis eines Querscans über das Kalibrierungsgitter, in dem das SNOM als Rasterkraftmikroskop verwendet wurde. Hierbei ist die Gitterhöhe von 22 nm gut erkennbar. Das Ausgangssignal, das vom PID-Regler berechnet wird und über die Datenerfassungskarte von NI zum Piezotisch gesendet wird, hat eine Ungenauigkeit von etwa 6 nm (vgl. Abb. 5.12 a). Dem gegenüber besitzt das am PID-Regler eingelesene Höhensignal, das von der Steuereinheit des Piezotischs ausgegeben wurde, ein starkes Rauschen von etwa 15 nm (vgl. Abb. 5.12 b). Daher ist das Ausgabesignal des PID-Reglers bzw. der Datenerfassungskarte zu bevorzugen.

Vom Hersteller wurde die Breite der Stufenebenen als 1,5 μm vorgegeben. Die Messung ergab eine Breite der Stufen von 2 μm mit einem mittleren Abstand von 0,4 μm . Die Diskrepanz dieser Werte entsteht, da die abscehnende Faserspitze selbst einen Durchmesser von rund 1 μm besitzt, wodurch die laterale Auflösung herabgesetzt wird.

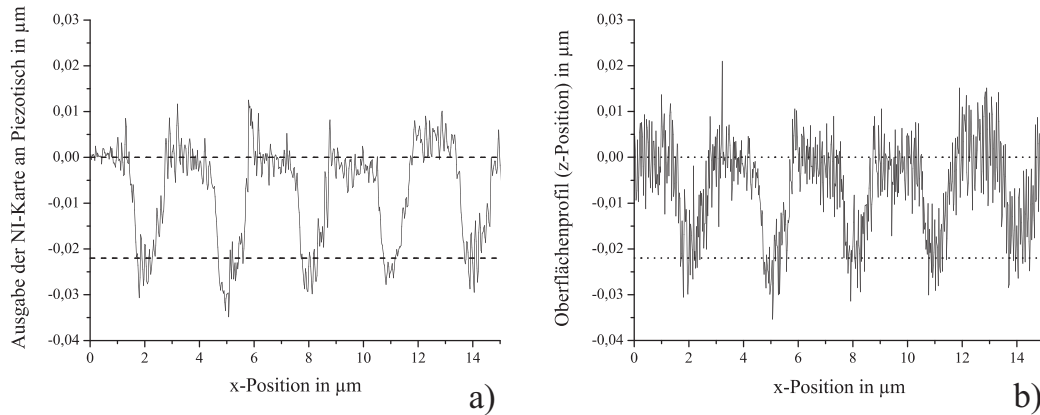


Abbildung 5.12: Querscan über Kalibrierungsgitter mit 22 nm Höhe und 3 μm Gitterkonstante: a) Höhengausgabesignal des PID-Reglers an die Steuereinheit des Piezotischs, b) von der Steuereinheit des Piezotischs am PID-Regler eingelesenes Höhengsignal. Die gestrichelten Linien sind in der Höhe von 0 nm und -22 nm eingezeichnet.

5.3.4 Zeitliche Stabilität

Zur Untersuchung der zeitlichen Stabilität des Systems während des Betriebes mit dem PID-Regler wurde eine Langzeitmessung über 50 min durchgeführt. Hierzu wurde die Fasersonde in Kontakt mit dem Piezotisch gebracht, die PID-Regelung eingestellt und über die Messzeit die Veränderung des Systems ohne äußere Änderung der Parameter bestimmt.

Die Messkurve in Abb. 5.13 zeigt das Rauschen von ca. 15 nm, wie es bereits im vorigen Abschnitt (Kap. 5.3.3) zu sehen war, sowie einige Sprünge von bis zu 50 nm, so dass die Ungenauigkeit der Kurve ungefähr 50 nm beträgt. Weiterhin weist die Kurve einen zeitlichen Anstieg von 59 nm/min auf. Dieser Drift von 59 nm/min im System ist nicht auf eine zeitliche Änderung des elektrischen Schwingquarzsignals zurückzuführen, sondern auf eine Ausdehnung des Linearaktuators in z-Richtung. Dies wurde durch weitere Messungen bestätigt. Dadurch sind laterale Scans, bei denen die z-Position des Piezotisches konstant gehalten wird nicht möglich. Hinzu kommt, dass die Probenoberfläche niemals perfekt in einer z-Ebene des Messsystems liegt. Aus diesen Gründen ist eine Höhenregelung, wie sie mit dem PID-Regler realisiert wird, unumgänglich.

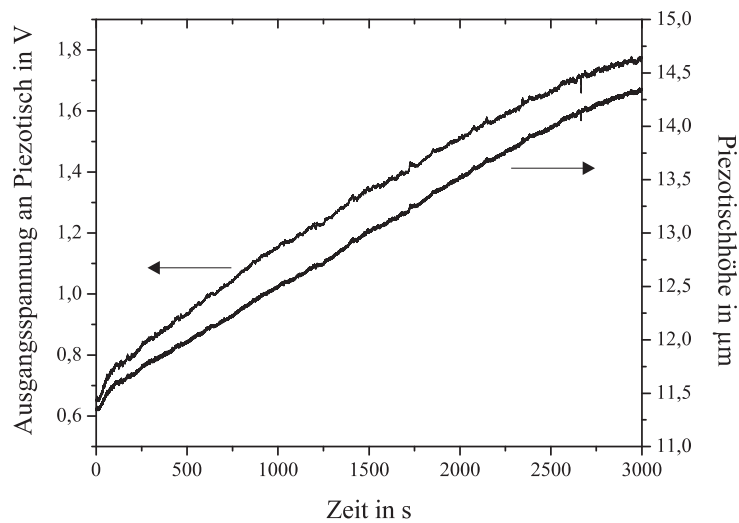


Abbildung 5.13: Stabilitätsmessung des PID-Regler-Systems über 50 min

5.3.5 Rauschunterdrückung des Photomultipliers

Im letzten Abschnitt dieses Kapitels wird das Rauschverhalten des Photomultipliers untersucht, da es die Qualität der Messung stark beeinflussen kann. Abbildung 5.14 zeigt das Oszilloskopsignal des Dunkelstroms, d.h. während der Aufnahme gelangt kein Licht auf die Detektorfläche. Es war eine Kontrollspannung von 0,8 V am Photomultiplier angelegt, was zu einem Rauschen von 2 mV und unregelmäßigen Peaks von bis zu 12 mV führte.

Aus diesem Grund wurde zur Rauschverminderung ein zusätzlicher Tiefpassfilter und zur Signalerhöhung ein 100-fach-Verstärker eingebaut. Das Rauschen in Abbildung 5.15 beträgt unter Verwendung dieser Komponenten unter 20 mV. Unter der Berücksichtigung des Verstärkungsfaktors von 100 bedeutet dies ein Rauschen von weniger als 0,2 mV im Vergleich zu den Messungen ohne Verstärker und Filter.

Das durch den Dunkelstrom hervorgerufene Rauschen konnte somit elektronisch um einen Faktor 10 bzw. 60 in den Spitzen unterdrückt werden.

Eine Rauschunterdrückung des Photomultipliers sowie die zuverlässige mechanische Positionierung der Fasersonde mit elektrischer Regelung sind unumgängliche Voraussetzungen für präzise Messungen von evaneszenten Feldern, wie sie im folgenden Abschnitt beschrieben durchgeführt wurden.

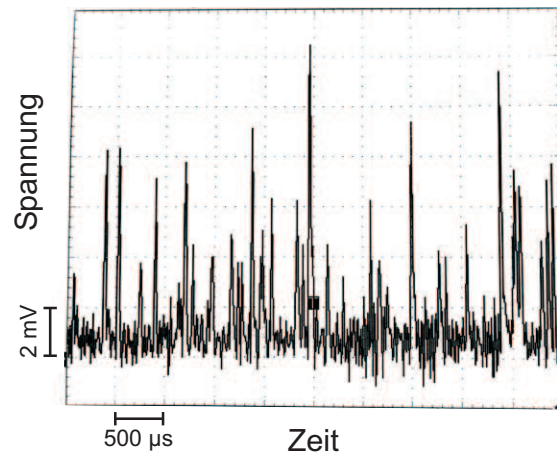


Abbildung 5.14: Photomultiplier-Dunkelstrom ohne Tiefpassfilter und 100fach-Verstärker: Kontrollspannung des Photomultipliers = 0,8 V, Aufnahmezeit = 100 kSamples/s

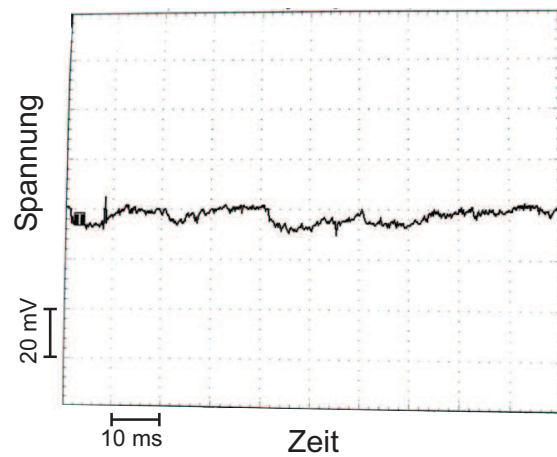


Abbildung 5.15: Photomultiplier-Dunkelstrom mit Tiefpassfilter und 100fach-Verstärker: Kontrollspannung des Photomultipliers = 0,7 V, Aufnahmezeit = 5 kSamples/s

5.4 Messung der evaneszenten Felder

Mit dem kalibrierten SNOM konnte das evaneszente Feld der in den LiNbO_3 -Wellenleiter geführten Mode vermessen und charakterisiert werden. Vermessen wurden sowohl unbeschichtete als auch mit TiO_2 beschichtete Bereiche von ca. 75 nm Schichtdicke des selben Wellenleiters, so dass die Intensitäten der gemessenen SNOM-Signale direkt miteinander verglichen werden können.

Hierzu wurde, wie in Abb. 5.16 schematisch dargestellt, Licht der Wellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ über die Faser in den Wellenleiter eingekoppelt. Das evaneszente Feld wurde mit der Glasfasersonde abgerastert. Zur Erhöhung des Signal-Rausch-Verhältnisses wurde das eingekoppelte Licht mit einer Frequenz von 330 Hz mit einem Chopper moduliert und das über Glasfaser und Photomultiplier aufgenommene Signal auf dieser Referenzfrequenz an einem Lock-In-Verstärker ausgewertet.

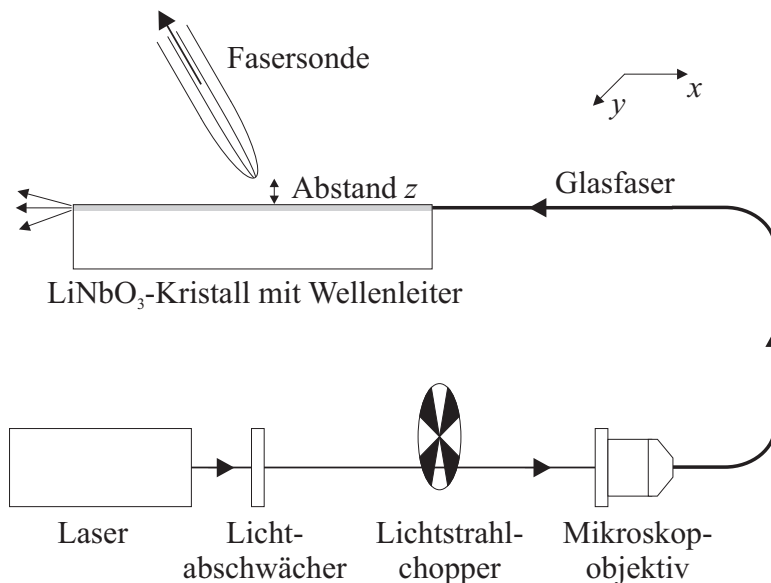


Abbildung 5.16: Schematischer Versuchsaufbau zur Messung der evaneszenten Feldintensitäten über dem Lichtwellenleiter

Die Lichtintensitäten im Wellenleiter lagen in der Größenordnung von wenigen μW . Für die einzelnen Messungen wurden unterschiedliche Parameter für die eingekoppelte Lichtleistung sowie für die Verstärkung des Photomultipliers gewählt. Diese wurden nach Abzug des Untergrundsignals über Kalibrierungsmessungen so zueinander ins Verhältnis gesetzt, dass die Verhältnisse der in den Graphen aufgetragenen SNOM-Signale die tatsächlichen Intensitätsverhältnisse der evaneszenten Feldintensitäten wiedergeben.

5.4.1 Höhenscan

Um die Eindringtiefe des evaneszenten Feldes zu bestimmen, wurden Scans in Abhängigkeit von der Höhe z über dem Wellenleiter im LiNbO_3 -Kristall durchgeführt. In Abb. 5.17 ist die gemessene Höhenabhängigkeit der mit dem SNOM aufgenommenen Intensität sowohl für den beschichteten als auch für den unbeschichteten Bereich des Wellenleiters logarithmisch aufgetragen. Beim Annähern an die Oberfläche ($z > 0$) steigt die Intensität exponentiell an und erreicht ihr Maximum an der Oberfläche ($z = 0$). Der vermeintliche Abfall der Intensität für negative z -Werte bezieht sich nicht auf Positionen innerhalb des Wellenleiters im LiNbO_3 -Kristall, sondern kann durch das Aufsetzen der Faser an die Oberfläche erklärt werden, die sich bei weiterer Annäherung vom Kristall weg biegt.

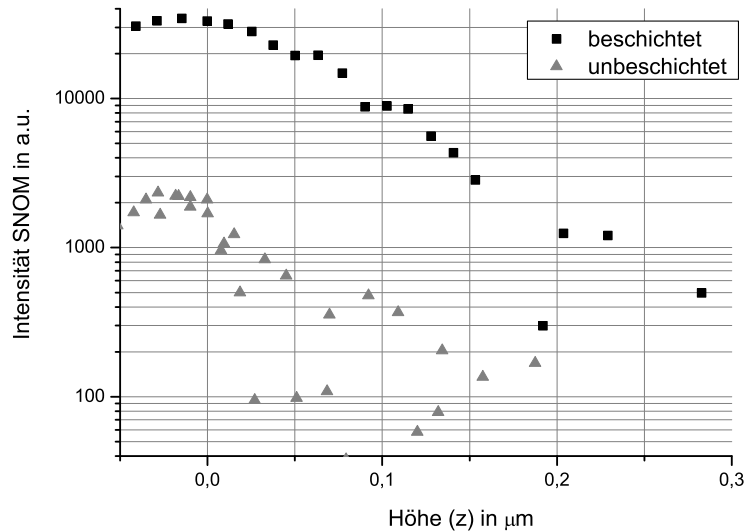


Abbildung 5.17: Höhenabhängigkeit der mit dem SNOM aufgenommenen evaneszenten Feldintensität für unbeschichtete und beschichtete Bereiche des Wellenleiters

Da beide Messungen in der Mitte des Wellenleiters (in y -Richtung) und somit am Punkt der höchsten Intensität aufgenommen wurden, lassen sich die mit dem SNOM gemessenen Intensitäten direkt miteinander vergleichen. Die Intensität an der Grenzfläche im beschichteten Bereich ist um einen Faktor 12 höher als im unbeschichteten Bereich.

Ebenfalls kann aus diesen gemessenen Kurven über einen Exponentialfit die Eindringtiefe des evaneszenten Feldes bestimmt werden. Hierbei ist zu beachten, dass sich die in diesem Kapitel bestimmten Eindringtiefen d_{pi} alle auf den exponentiellen Abfall der Intensität beziehen, da diese mit dem SNOM gemessen wurde. Der Zusammenhang zum in der Literatur üblicherweise verwendeten Begriff der Eindringtiefe, die als die Strecke definiert ist, bei der das elektrische Feld auf $1/e$ abgefallen ist, ist gegeben durch $d_{pi}=d_p/2$.

Für den unbeschichteten Bereich ergibt sich $d_{pi,u} = (43 \pm 13)$ nm, für den beschichteten $d_{pi,b} = (57 \pm 8)$ nm. Der in den in Kapitel 3 Simulationen berechnete Wert ergab $d_{pi,sim} = 21,2$ nm sowohl für den unbeschichteten als auch für den beschichteten Bereich.

Die gemessenen Eindringtiefen übersteigen die berechneten um einen Faktor 2 im beschichteten und einen Faktor 2,7 im unbeschichteten Bereich. Die Ursachen für die Diskrepanz sind folgende:

- Die größte Abweichung ergibt sich aus der Tatsache, dass die Tiefe des in den Simulationen berechneten Brechungsindexprofils stark von den Produktionsparametern abhängt. Insbesondere wirken sich schon kleinste Temperaturschwankungen (im Promillebereich) während des Diffusionsprozesses auf die Tiefe des Profils aus. Hierdurch ändert sich auch die Modenverteilung im Wellenleiter und mit ihr die Eindringtiefe.
- Die Werte aus den numerischen Simulationen gelten für das ungestörte evaneszente Feld, sie beziehen keine Interaktion mit der Faserspitze ein.
- Aufgrund der mechanischen Genauigkeit der Piezoaktuatoren lag die Auflösung des Systems in z-Richtung in der Größenordnung von $\Delta z = 5$ nm.
- Eine weitere Abweichung entsteht durch die Verwendung einer vergleichsweise runden Faserspitze [32, 61, 70]. Mit zunehmendem Spitzenradius erhöht sich die Eindringtiefe [32]; die exakte Berechnung ist stark abhängig von der verwendeten Geometrie.

Dennoch wurde diese Faserspitze verwendet, denn die Einkopplungseffizienz des evaneszenten Feldes in die Faser ist bei Spitzen mit größerem Radius höher als bei Spitzen mit kleinerem Radius. Andernfalls hätte das die Konsequenz, dass die Effizienz der Photonenzählrate sowie das Signal-Rausch-Verhältnis des Photomultipliers die Genauigkeit der Messung eingeschränkt hätten. Aus den eben erwähnten Gründen lässt sich auch erklären, dass die Messungengenauigkeit im beschichteten Bereich mit höherer Signalintensität deutlich geringer ist als im unbeschichteten. Auch das Signal-Rausch-Verhältnis ist mit $S/N_u \approx 3,6$ im unbeschichteten Bereich schlechter als im

beschichteten mit $S/N_b \approx 8,2$. Von einer Erhöhung des Signals durch Erhöhung der in den Wellenleiter eingekoppelten Intensität wurde abgesehen, da es sich bei LiNbO_3 um ein nicht-linear optisches Material handelt. Diese nicht-linearen Effekte treten bei höheren verwendeten Intensitäten auf und hätten die Messung verfälscht.

Mit diesen Messungen konnte gezeigt werden, dass sowohl die simulierten Werte als auch alle mit dem SNOM gemessenen Werte für die Eindringtiefe des evaneszenten Feldes über dem Wellenleiter in der selben Größenordnung von nur wenigen 10 nm liegen.

5.4.2 Lateraler (1D-) Scan an der Oberfläche

Ein weiteres Experiment, das durchgeführt wurde um die Erhöhung der Intensität des evaneszenten Feldes an der Grenzfläche zu untersuchen, bestand in lateralen Scans in y - Richtung. Wieder wurden unbeschichtete sowie mit TiO_2 beschichtete Bereiche untersucht. Dazu wurde der PID-Regler, der die Höhe des Piezotisches regelt, verwendet, um während des Scans einen konstanten Abstand (0) zwischen Fasersonde und Wellenleiterkristalloberfläche zu gewährleisten. Weiterhin war es bei dieser Messreihe möglich, den Tapping Mode des SNOM zu verwenden, der das System weniger anfällig für externe (insbesondere mechanische) Störungen macht. Dennoch war auch hier das Signal-Rausch-Verhältnis mit $S/N_u \approx 4,2$ im unbeschichteten und mit $S/N_b \approx 9,3$ im beschichteten Bereich aufgrund der kleinen Signalhöhen recht gering.

In Abb. 5.18 sind die gemessenen Intensitätsverläufe der Lateralscans für beide Bereiche aufgetragen. Vergleicht man die Intensitäten an den Maxima im Zentrum (in y) des Wellenleiters, so ergibt sich ein Verhältnis der Intensität an der Grenzfläche des beschichteten Bereiches zu der des unbeschichteten Bereichs von $I_{b,z=0}/I_{u,z=0} = 15$.

Ein Vergleich der gemessenen und der simulierten Intensitätsverteilung an der jeweiligen Grenzfläche ist in Abb. 5.19 für den beschichteten und in Abb. 5.20 für den unbeschichteten Bereich dargestellt. Als Vergleichskriterium wurde der Wert des FWHM (Full Width at Half Maximum) verwendet. In der Simulation ergibt sich sowohl für den beschichteten als auch für den unbeschichteten Bereich $\text{FWHM}_{sim} = 2,8 \mu\text{m}$, für die gemessene Verteilungen für beide Bereiche $\text{FWHM}_{exp} = 2,7 \pm 0,1 \mu\text{m}$. Die experimentellen Ergebnisse stimmen somit gut mit den theoretisch ermittelten Werten überein.

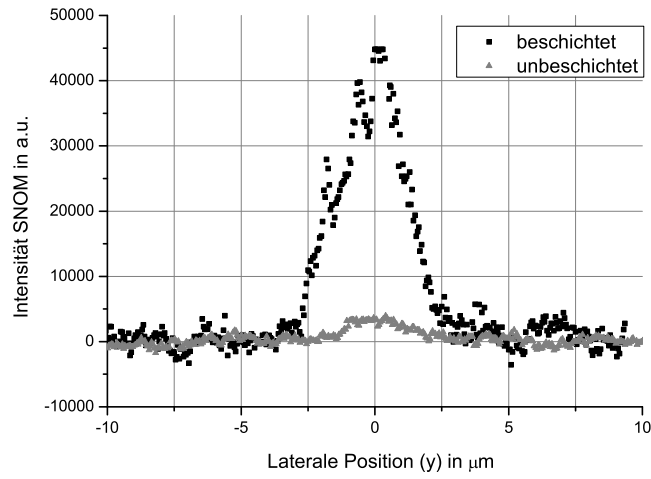


Abbildung 5.18: Lateraler (y) Scan der evaneszenten Feldintensität an der Grenzfläche im beschichteten und unbeschichteten Bereich des Wellenleiters

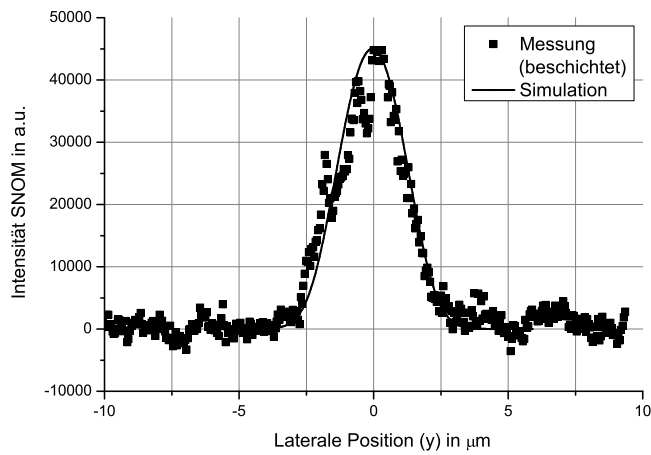


Abbildung 5.19: Gemessene und simulierte Intensitätsverteilung an der Grenzfläche im beschichteten Bereich in lateraler (y) Richtung

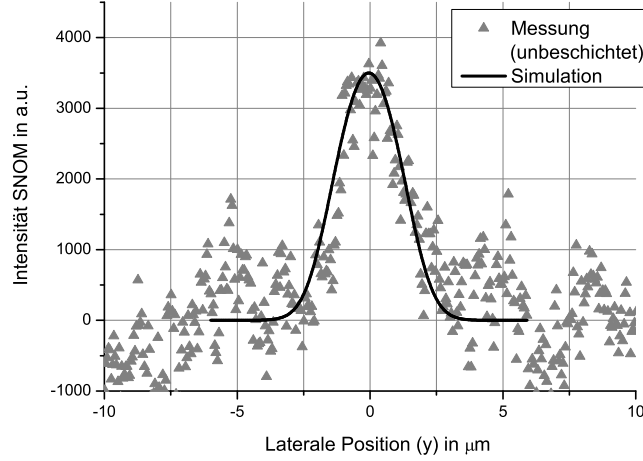


Abbildung 5.20: Gemessene und simulierte Intensitätsverteilung an der Grenzfläche im unbeschichteten Bereich in lateraler (y) Richtung

Die evaneszenten Felder über dem Wellenleiter werden in den in Kap. 6 beschriebenen Experimenten zur Fluoreszenzanregung in der Grenzschicht über dem Wellenleiter verwendet. Der direkte Vergleich der Lateralverteilung der Fluoreszenzanregung mit der des anregenden evaneszenten Feldes wird in Abschnitt 6.4 gezeigt.

5.4.3 2D-Scan

Für die oben durchgeführten Messungen wurde ein SNOM aufgebaut, das insbesondere auf die Aufnahme von kleinen Lichtintensitäten mit einer hohen mechanischen Auflösung in z -Richtung optimiert wurde, um die Eindringtiefe der evaneszenten Felder bestimmen zu können.

Für viele kommerziell erhältliche SNOM-Geräte ist die Auflösung in z kein entscheidendes Kriterium, sie sind vielmehr darauf ausgelegt, schnelle Scans in zwei Dimensionen an der Oberfläche einer Probe durchzuführen. Für eine solche Messung stand ein Gerät an der Universität des Saarlandes in Saarbrücken zur Verfügung, mit dem die Scans in Abb. 5.21 aufgenommen wurden [71]. Die linke Seite zeigt den AFM-Scan eines $6\ \mu\text{m}$ breiten Wellenleiters und damit sein Oberflächenprofil. Rechts ist das SNOM-Signal des evaneszenten Feldes der im Wellenleiter geführten Mode an der Oberfläche im selben Bereich aufgenommen. Mit dieser Messung konnten weiterhin die in

unserem Institut durchgeführten Messungen der Feldverteilung in y -Richtung an der Grenzfläche überprüft und bestätigt werden. Die Durchführung eines Höhenscans in z -Richtung war mit dem Gerät in Saarbrücken nicht möglich.

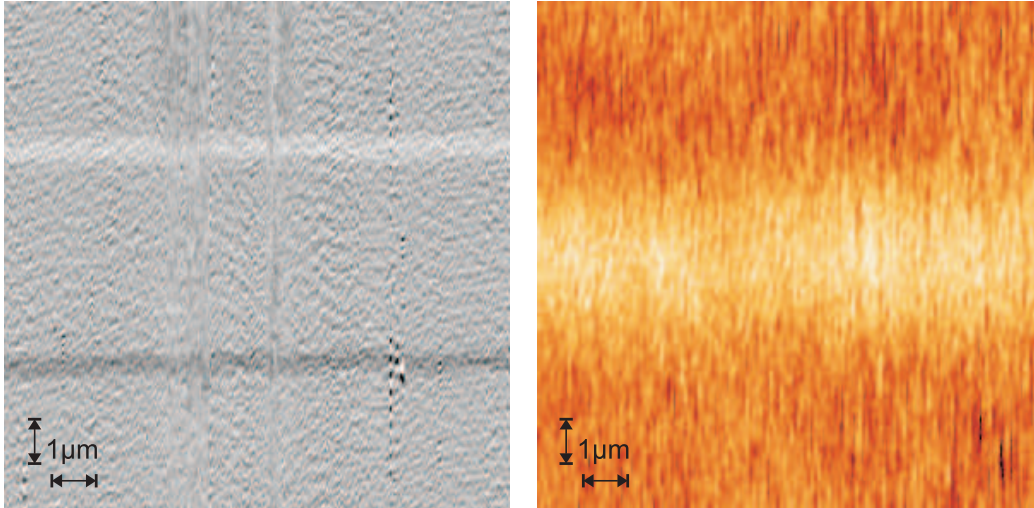


Abbildung 5.21: Zweidimensionaler Scan an der Oberfläche des Wellenleiters. Links: AFM-Aufnahme der Topologie. Rechts: SNOM-Aufnahme der Intensität des evaneszenten Feldes.

5.5 Zusammenfassende Diskussion der Messergebnisse

Die evaneszenten Feldintensitäten der geführten Mode in einem Titan-eindiffundierten Wellenleiter in LiNbO_3 konnten mit der SNOM-Technik vermessen und charakterisiert werden.

Um diese Messungen durchführen zu können, wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Rasterkraftmikroskop zu einem SNOM im Kollektionsmodus erweitert. Die Ortsauflösung des Gesamtsystems lag in der Größenordnung von wenigen nm in der Höhe (z) und wenigen 100 nm in der Ebene senkrecht (x und y) dazu. Die durchgeführten Charakterisierungen zur präzisen mechanischen Positionierung sowie zur erforderlichen Verstärkung des optischen Signals des aufgebauten SNOM ergaben, dass es ein geeignetes Instrument zur Messung der evaneszenten Felder der in den Wellenleitern geführten Moden darstellt, insbesondere zur Messung der Eindringtiefe.

Der berechnete Wert für die Eindringtiefe sowie für die laterale Intensitätsverteilung stimmen mit den Literaturwerten überein [72, 73]. Im Vergleich zu den numerischen Simulationen (s. Kap. 3) überschreiten die mit dem SNOM gemessenen Werte der Eindringtiefe von $d_{pi,u} = (43 \pm 13)$ nm im unbeschichteten Bereich und $d_{pi,b} = (57 \pm 8)$ nm im beschichteten Bereich die berechneten Werte um einen Faktor von 2 im beschichteten Fall und um einen Faktor von 2,7 im unbeschichteten Fall. Die Hauptursache für diese Diskrepanz liegt in der starken Abhängigkeit der berechneten Tiefe des Brechungsindexprofils von verschiedenen Produktionsparametern und der dadurch veränderten Intensitätsverteilung der geführten Mode. Dennoch liegen sowohl gemessene als auch simulierte Werte für die Eindringtiefe in beiden Bereichen in der Größenordnung von nur wenigen 10 nm. Im Vergleich zu Eindringtiefen evaneszenter Felder, die mit anderen Materialien erzielt werden können [74, 75], ist dies ein sehr geringer Wert, was sich als sehr vorteilhaft für Anwendungen erweist, in denen eine hohe z-Auflösung benötigt wird.

Im Fall des durchgeführten lateralen Scans an der Oberfläche stimmen die gemessenen mit den theoretischen Kurven im Rahmen der Messungenauigkeit überein. Es konnte ebenfalls gezeigt werden, dass durch die Beschichtung des Wellenleiters mit einer dünnen Metalloxidschicht die Intensität an der Grenzfläche um eine Größenordnung (Faktor 12-15) erhöht werden kann.

Die auf diese Weise erzielte Erhöhung der Intensität des evaneszenten Anteils der geführten Mode an der Grenzfläche bei extrem kurzen Eindringtiefen konnte hier zum ersten Mal mit der SNOM-Technik vermessen und charakterisiert werden [16, 17].

Die präsentierte Manipulation und Charakterisierung des in einem titaneindiffundierten Wellenleiters in LiNbO_3 mittels einer dünnen TiO_2 -Beschichtung macht diese integriert-optischen Bauelemente attraktiv für Anwendungen, bei denen sehr kurze Eindringtiefen bei hohen Intensitäten an der Grenzschicht benötigt werden. Ein Beispiel für diese Anwendungen ist der Einsatz solcher Bauelemente als integriert optische Nahfeldlichtquelle, mit der höchste optische Auflösung in einer Grenzschicht erzielt werden kann. Die experimentelle Realisierung wurde im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt, im folgenden Kapitel 6 wird der Aufbau erklärt und die erzielten Ergebnisse der evaneszenten Fluoreszenzanregung in der Grenzschicht vorgestellt und diskutiert.

Kapitel 6

Fluoreszenzanregung durch evaneszente Felder

Die hergestellten Wellenleiter-Bauelemente sollen nach ihrer Charakterisierung mit dem SNOM als Nahfeldlichtquelle zur Fluoreszenzanregung in dünnen Schichten verwendet werden. Mit dieser Technik kann eine hohe Ortsauflösung bei der Anregung der Fluoreszenz in der Grenzschicht von nur wenigen 10 nm Dicke erreicht werden.

Technisch wird dies realisiert, indem die Wellenleiter-Bauelemente in ein Mikroskopsystem integriert werden, mit dem die Fluoreszenz der Probe detektiert wird. Dieses Konzept ist analog zu dem von Axelrod entwickelten [76] und in den letzten Jahren insbesondere in Hinblick auf biologische Applikationen stark weiterentwickelten TIRFM (engl.: Total Internal Reflection Fluorescence Microscopy = Innere Totalreflektions-Fluoreszenzmikroskopie). Hierbei wird ein evaneszentes Feld durch Totalreflektion erzeugt, in der Regel an einem Prisma oder einem Glasplättchen, auf dem sich die zu untersuchende Probe befindet. Mit dem Feld werden Fluorophore angeregt, mit denen die Probe markiert wurde. Das Fluoreszenzlicht wird durch ein Filter vom Anregungslicht getrennt und mit einer Kamera detektiert. TIRF-Mikroskopsysteme sind kommerziell erhältlich und finden ihre Hauptanwendung in der Untersuchung biologischer Systeme. Weitere Anwendungen finden sich aber auch beispielsweise in der Strömungsmechanik in der PIV-Technik (engl.: Particle Image Velocimetry = Geschwindigkeitsmessung des Abbildes eines Teilchens), bei der Geschwindigkeitsfelder einer fließenden Flüssigkeit an der Grenzfläche zu einer Wand dargestellt werden können [77].

In diesem Kapitel wird zunächst das Prinzip der Fluoreszenzanregung durch die evaneszenten Felder an der Grenzschicht dargelegt. Anschließend wird in diesem Kapitel der experimentelle Aufbau des speziell für die Messungen konstruierten Wellenleiter-Mikroskopsystems beschrieben, bei denen

die Fluoreszenz von Farbstoffen durch die evaneszenten Feldanteile der im Lithiumniobat-Wellenleiter geführten Mode angeregt wird. Zur Charakterisierung und in Analogie zur SNOM-Messung wird zunächst das Fluoreszenzsignal über dem Querschnitt des Wellenleiters aufgenommen. Weiterhin wird die Abhängigkeit des Fluoreszenzsignals zweier Farbstoffe von der vorliegenden Farbstoffkonzentration untersucht, um zu bestimmen, bis zu welcher Minimalkonzentration Fluoreszenzsignale mit dem System detektiert werden können. Im Anschluss werden Anwendungsbeispiele für Strömungslehre und Biologie demonstriert. Im Rahmen der abschließenden Diskussion der Messergebnisse werden im Vergleich die Vor- und Nachteile des Wellenleiter-Mikroskopsystems mit denen der TIRF-Mikroskopie zusammengefasst.

6.1 Prinzip

In Abb. 6.1 ist schematisch dargestellt, wie die örtlich hochaufgelöste Fluoreszenzanregung durch das evaneszente Feld realisiert wird: Auf der linken Seite der Graphik ist die Intensitätsverteilung der im Wellenleiter geführten Mode und deren evaneszenter Anteil skizziert. Dieser regt die in der Probe (dies kann eine Zelle oder ein Tropfen sein) befindlichen Fluorophore an, allerdings ist die Anregungszone auf die Schicht oberhalb der Grenzfläche von Wellenleiter und Probe beschränkt. Die Dicke der Grenzschicht ist hierbei durch die Eindringtiefe der evaneszenten Intensität gegeben [76]. Das emittierte Fluoreszenzlicht des Farbstoffs ist rotverschoben gegenüber der

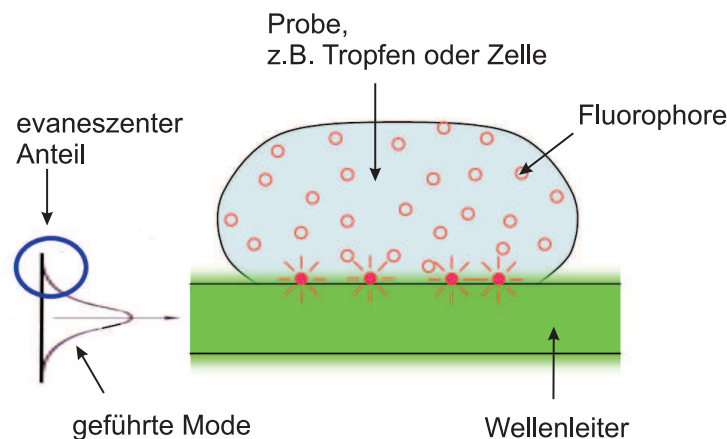


Abbildung 6.1: Fluoreszenzanregung über dem Wellenleiter durch das evaneszente Feld [71]

Anregungswellenlänge und wird in alle Raumrichtungen (4π) emittiert. Für Messanwendungen besteht einerseits die Möglichkeit, dieses Licht über eine Mikroskopoptik auf eine CCD-Kamera zu leiten, wie es üblicherweise in der TIRF-Mikroskopie und auch in den folgenden Messungen realisiert wurde. Für Anwendungen in der Sensorik wird andererseits oft von der Möglichkeit Gebrauch gemacht, das Fluoreszenzlicht wieder in den Wellenleiter einzukoppeln und auf diesem Weg zu detektieren.

6.1.1 Mechanismus der Fluoreszenzanregung

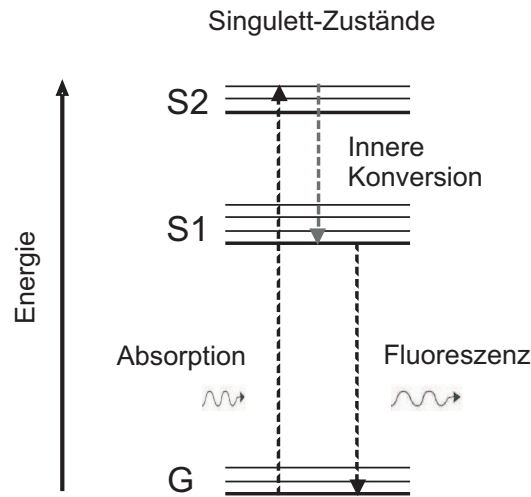


Abbildung 6.2: Jablonski-Diagramm der Fluoreszenzanregung

Um ein Farbstoffmolekül zum Leuchten anzuregen, muss zunächst Energie zugeführt werden, um die Elektronen vom Grundzustand G in einen angeregten (Singulett-) Zustand S2 zu bringen, wie im Jablonski-Diagramm [78] in Abb. 6.2 dargestellt. Dabei genügt die Energie der hier eingezeichneten absorbierten Photons der Bedingung

$$\Delta E = S2 - G = \frac{h \cdot c}{\lambda} \quad (6.1)$$

wobei h das Plancksche Wirkungsquantum, c die Vakuumlichtgeschwindigkeit und λ die Wellenlänge des eingestrahnten Lichts bezeichnet. Der Begriff der Fluoreszenz bezeichnet strahlungsfreisetzende spinerhaltende Übergänge vom angeregten Singulett-Zustand S1 in den Grundzustand G mit typischen Zerfallszeiten von $\tau = 10$ ns [7], die auf strahlungslose Übergänge

(innere Konversion) des Elektrons vom Niveau S2 auf das Niveau S1 folgen. Fluoreszenzemission ist ein zufälliger Prozess, und die Lebensdauer τ gibt den Mittelwert der Verweildauer des Elektrons im angeregten Zustand an. Die Lebensdauer angeregter Energieniveaus verursacht deshalb eine natürliche Linienbreite, der Zusammenhang gehorcht folgender Unschärferelation $\Delta E \cdot \tau \geq h/2\pi$.

So besitzt jede Kombination aus Farbstoff und Lösungsmittel ein charakteristisches Anregungs- und Emissionsspektrum. Das Emissionsspektrum ist gegenüber dem Absorptionsspektrum rotverschoben, was auch nach dem Entdecker als Stokes-Shift bezeichnet wird [79]. Üblicherweise wird in den Spektren der molare Extinktionskoeffizient ϵ in Abhängigkeit von der Wellenlänge aufgetragen. Die Spektren der in den Experimenten verwendeten Farbstoffe befinden sich im Anhang B. Eine weitere charakteristische Größe zur Quantifizierung von Fluoreszenzemission ist die Quantenausbeute $\Phi = \frac{n_u}{n_a}$, die das Verhältnis von umgewandelten Photonen zu absorbierten Photonen bei einer gegebenen Wellenlänge angibt.

6.1.2 Fluoreszenzemission aus dem Volumen

Die von einem mit der Intensität I_0 angeregten Molekül in den Raumwinkel $\Phi = 4\pi$ abgestrahlte Fluoreszenzleistung ΔP_F^{Vol} in einem Volumenelement $\Delta V = \Delta A \cdot d_{Sch}$ (mit dem Flächenelement ΔA und der Schichtdicke d_{Sch}) ist gegeben durch [80]

$$\Delta P_F^{Vol} = C \cdot \alpha \cdot \Phi \cdot \Delta A \cdot d_{Sch} \cdot I_0 \quad (6.2)$$

Dabei ist C die Konzentration des Farbstoffs, α der Absorptionskoeffizient und Φ die Quanteneffizienz.

6.1.3 Detektion mit der Kamera

Die auf den Kamerachip auftreffende Leistung P_{Kamera} ist proportional zur emittierten Fluoreszenzleistung ΔP_F^{Vol} und gegeben durch [80]:

$$P_{Kamera} = \Omega_{Obj} \cdot T_{Mikr} \cdot T_{Filter} \cdot \Delta P_F^{Vol} \quad (6.3)$$

Ω_{Obj} berücksichtigt den Teil des Raumwinkels, in dem die im Volumenelement im Raumwinkel 4π isotrop abgestrahlte Fluoreszenz vom Mikroskopobjektiv erfasst wird. Weiterhin ist T_{Mikr} die Transmission im Mikroskop, die sich aus der Transmission des Mikroskopobjektivs, aller weiteren Linsen

sowie auftretender Reflexionen an den Optiken zusammensetzt. T_{Filter} bezeichnet die (Transmissions-) Charakteristik des verwendeten Filters, die des hier verwendeten Filters befindet sich in Anhang B.

Der Anteil der von der Kamera detektierten Photonen N_{det} von den eintreffenden Photonen N_{ein} wird als Quanteneffizienz QE der Kamera bezeichnet. Es gilt $QE = \frac{N_{det}}{N_{ein}}$.

6.2 Experimenteller Aufbau

In Abb. 6.3 ist der Versuchsaufbau für die Fluoreszenzmessungen schematisch dargestellt. Ein Foto des Aufbaus ist in Abb. 6.4 zu sehen. Das Anregungslicht eines frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers mit $\lambda = 532 \text{ nm}$ wird über eine Faser in den Wellenleiter eingekoppelt, auf dem sich die fluoreszierende Probe befindet. Diese wird über eine Mikroskopoptik, mit der auf die Grenzschicht fokussiert wird, auf eine CCD-Kamera abgebildet. Um das Fluoreszenzlicht im roten Spektralbereich (vgl. Farbstoffcharakteristika im Anhang B) vom Anregungs- bzw. auftretendem Streulicht zu trennen, wurde ein optisches Tiefpassfilter mit Grenzwellenlänge $\lambda = 570 \pm 15 \text{ nm}$ verwendet.

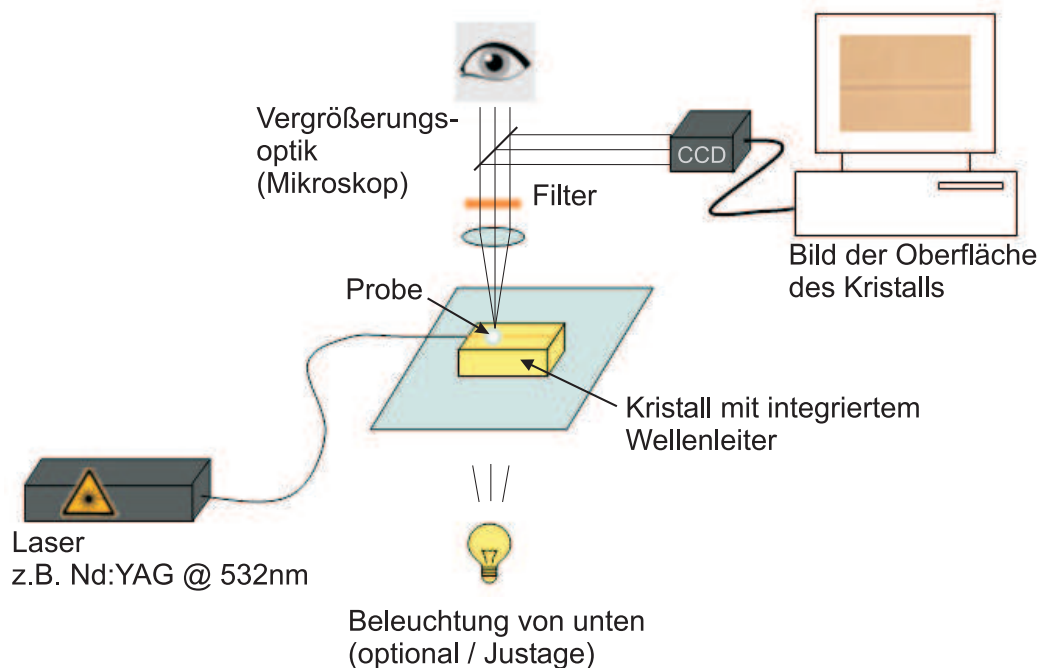


Abbildung 6.3: Schematischer Aufbau zur Fluoreszenzmessung

Das Transmissionsspektrum des Filters befindet sich im Anhang B. Optional stand zur Justage die Verwendung eines Okkulars zur Verfügung sowie die Möglichkeit, Wellenleiter und Probe mit einer Glühlampe in Transmission zu beleuchten.

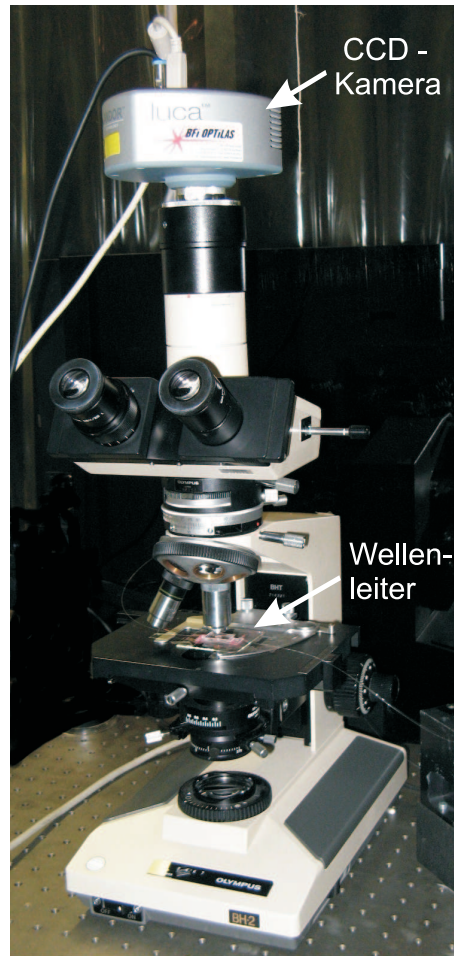


Abbildung 6.4: Experimenteller Aufbau zur Fluoreszenzmessung

Als Kamera wurde das Model LUCA der Firma AndorTM Technology verwendet, eine hochempfindliche gekühlte EMCCD-Kamera (= Electron Multiplying Charged Coupled Device) mit 16 bit Auflösung und einer Quanteneffizienz QE von 40 % (rot) - 50 % (grün)¹. Das so aufgenommene Bild konnte direkt im PC mit der Software Andor Solis weiterverarbeitet werden.

¹s. Datenblatt: User's guide to the AndorTM Technology, 2006

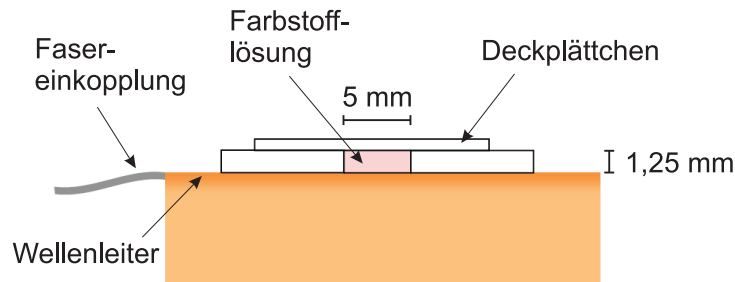


Abbildung 6.5: Schematische Seitenansicht des Aufbaus zur Messung der Fluoreszenzanregung in der Farbstofflösung über dem Wellenleiter

Eine detailliertere Skizze der Deposition der Farbstofflösung über dem Wellenleiter, wie sie insbesondere für die Messungen in den folgenden Abschnitten 6.3 und 6.4 verwendet wurde, ist in Abb. 6.5 dargestellt. Auf den Lithiumniobat-Kristall ist ein Objektträger mit einer kreisrunden Kavität über dem Wellenleiter aufgeklebt, in die die Farbstofflösung gefüllt wird. Um eine Evaporation des flüchtigen Lösungsmittels und damit eine Änderung der Farbstoffkonzentration zu verhindern, wurde die mit Farbstofflösung gefüllte Kavität mit einem Deckplättchen aus Glas abgedeckt. Dadurch ist für die Einzelmessungen immer das selbe Volumen der Farbstofflösung und somit eine feste Höhe definiert, in der die Absorption des Fluoreszenzlichts nach dem Lambert-Beer-Gesetz (Gl. 6.4) gegeben ist.

Absorption im Volumen nach Lambert-Beer

Beim Durchgang des Lichts durch ein Volumen mit Farbstofflösung kommt es zu Absorption. Unter der Annahme einer hinreichend verdünnten, homogenen Lösung mit der Konzentration c gilt für die Abnahme von Lichtintensität über die Wegstrecke L das Lambert-Beer'sche Gesetz:

$$I_{z=L} = I_{z=0} \cdot e^{-\alpha \cdot c \cdot L} \quad (6.4)$$

mit dem stoffspezifischen Absorptionskoeffizienten α .

6.3 Konzentrationsmessung

Zur Ermittlung der unteren Nachweisgrenze c_{min} , also der Konzentration, bei der das Fluoreszenzsignal nicht mehr vom Untergrund zu trennen ist, wurde die Abhängigkeit des von der Kamera gemessenen Fluoreszenzsignals von der Konzentration c des Farbstoffes bestimmt. Diese Abhängigkeit charakterisiert das System, so dass sinnvolle Messparameter für die weiteren Experimente gewählt werden können. Insbesondere muss die Konzentration der Farbstoffe über der Nachweisgrenze liegen, aber z.B. auch die Aufnahmezeit der Kamera kann so gewählt, dass hohe Signale unterhalb der Sättigung aufgenommen werden.

Dazu wurde der in Abb. 6.5 skizzierte Aufbau verwendet. Es wurden Messreihen mit den Farbstoffen DCM und Rhodamin B durchgeführt, als Lösungsmittel wurde Ethanol verwendet. Die Charakteristika der Farbstoffe sind in Anhang B zusammengefasst. Dabei wurden jeweils die Konzentration der Farbstoffe und Aufnahmedauer der Kamera variiert. Gemessen wurde auf einem unbeschichteten Wellenleiter, die Anregungsleistung wurde so gewählt, dass $P = 1 \mu\text{W}$ bei einer Wellenlänge von $\lambda = 532 \text{ nm}$ in den Wellenleiter eingekoppelt wurde.

In den Abb. 6.6 - 6.9 sind die aufgenommenen Daten für die Farbstoffe DCM und Rhodamin B zusammengetragen. Als Kamerasignal auf den y-Achsen aufgetragen ist der auf ein Pixel normierte Grauwert der Kamera (bei maximaler Verstärkerleistung), auf den x-Achsen die Konzentration der Farbstoffe. Die Konzentrationen liegen im Bereich von 0,1 mM, was sich als untere Nachweisgrenze für beide Farbstoffe erwiesen hat, bis 3 mM. Die Aufnahmezeiten der Kamera lagen zwischen 0,4 s und 6 s. Ein Sättigungsverhalten der Kamera trat bei den eingestellten Parametern bei Aufnahmezeiten ab $t = 6 \text{ s}$ auf. In Abb. 6.6 und 6.8 ist der gesamte Messbereich aufgetragen, in Abb. 6.7 und 6.9 die jeweiligen Ausschnitte im Bereich kleiner Konzentrationen. Anhand dieser Kurven ist es möglich, eine unbekannte Konzentration dieser Farbstoffe zu bestimmen.

Die unterschiedliche Form der Kurven der beiden Farbstoffe im Anstieg des Signals bei zunehmender Konzentration sind auf unterschiedliches Verhalten der Farbstoffe auf unterschiedliche Quenchingeffekte zurückzuführen. Diese sollen im Rahmen dieser Arbeit nicht diskutiert werden, eine detaillierte Darstellung der Effekte findet sich in dem Werk von Lakowicz [7]. Als Fazit für die Verwendung des Wellenleiter-Mikroskops soll die Tatsache genügen, dass für unterschiedliche Farbstoffe unterschiedliche Eichkurven aufgenommen werden müssen.

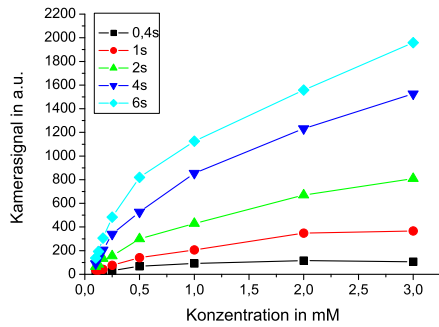


Abbildung 6.6: Abhängigkeit des Kamerasignals von der Konzentration des Farbstoffes DCM für verschiedene Aufnahmezeiten der Kamera

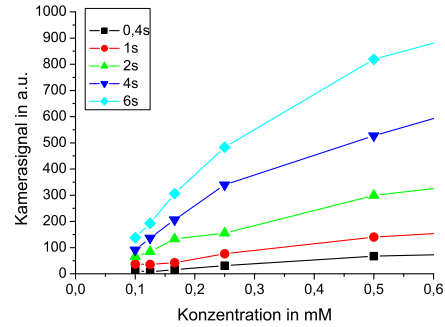


Abbildung 6.7: Ausschnitt aus Abb. 6.6 im Bereich kleiner Konzentrationen

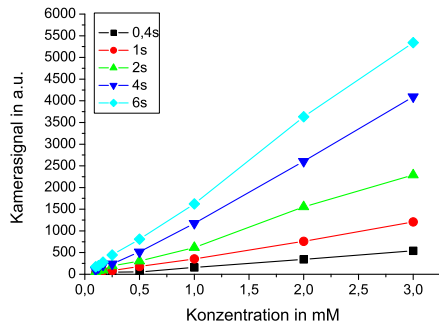


Abbildung 6.8: Abhängigkeit des Kamerasignals von der Konzentration des Farbstoffes Rhodamin B für verschiedene Aufnahmezeiten der Kamera

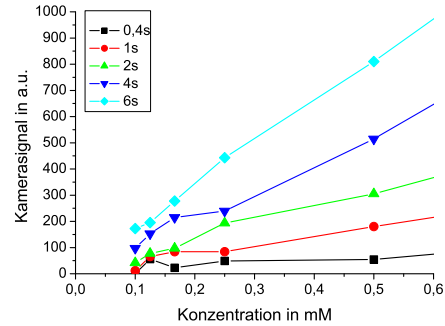


Abbildung 6.9: Ausschnitt aus Abb. 6.8 im Bereich kleiner Konzentrationen

Diese Messreihen geben Aufschluss über die Nachweisgrenze und den Anstieg des Signals bei zunehmender Konzentration. Hierbei wurde allerdings noch nicht die Absorption im Deckmedium nach Lambert-Beer (Gl. 6.4) berücksichtigt. Die Abhängigkeiten des Kamerasignals von der Konzentration der Farbstoffe unter Berücksichtigung der Absorption sind in Abb. 6.10 (gesamter Messbereich) und in Abb. 6.11 (Ausschnitt bei kleinen Konzentrationen) logarithmisch dargestellt.

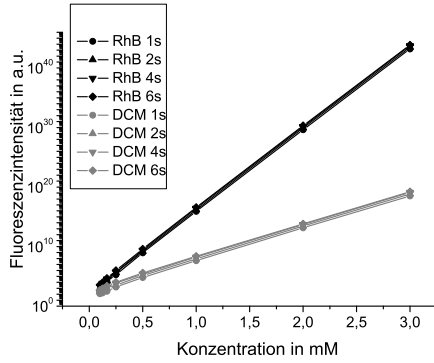


Abbildung 6.10: Abhängigkeit der Fluoreszenzintensität von der Konzentration der Farbstoffe DCM und Rhodamin B für verschiedene Aufnahmezeiten der Kamera

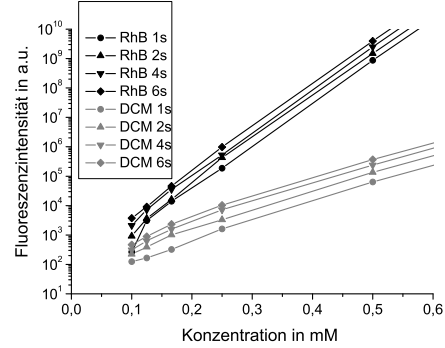


Abbildung 6.11: Ausschnitt aus Abb. 6.10 im Bereich kleiner Konzentrationen

Verglichen mit anderen integriert optischen Wellenleiter-Mikroskopen können mit dem LiNbO_3 -Wellenleiter nur relativ hohe Farbstoffkonzentrationen nachgewiesen werden. Zum Vergleich: Mit integriert-optischen Wellenleitern in Glas können Konzentrationen bis $c_{\min} \approx 10 \text{ nM}$ [80] nachgewiesen werden, im Fall der mit den LiNbO_3 -Wellenleiter lag diese bei im Bereich von $c_{\min} \approx 100 \text{ }\mu\text{M}$.

Allerdings ist hierbei anzumerken, dass bei dem von Lehr [80] verwendeten Aufbau die Eindringtiefe der evaneszenten Feldintensität mehr als doppelt so groß ist. Weiterhin beschreiben die in [80] durchgeführten Arbeiten ein starkes Dämpfungsverhalten der im Wellenleiter geführten Lichtintensität auch bei niedrigen Konzentrationen (z.B. $\alpha = 114 \text{ dB/cm}$ bei $c = 10 \text{ }\mu\text{M}$). Die Dämpfungskoeffizienten für titaneindiffundierte Wellenleiter in LiNbO_3 liegen in der Größenordnung von 0,1 - 0,5 dB/cm [81]. Auch bei Farbstoffkonzentrationen von $c = 3 \text{ mM}$ konnte weder im beschichteten (im Fall TiO_2 -beschichteter Wellenleiter) noch im unbeschichteten Bereich eine höhere Dämpfung durch den Farbstoff festgestellt werden. Einzig im Bereich von jeweils ca. $100 \text{ }\mu\text{m}$ an der Grenze der Beschichtung kam es zu einer starken Dämpfung aufgrund von Auskopplung von Streulicht (vgl. auch Abschnitt 6.5).

6.4 Querschnitt

Als erstes Anwendungsbeispiel in der Strömungslehre wurde der laterale Querschnitts der Fluoreszenzintensität über dem Wellenleiter bestimmt. Hiermit wird gleichzeitig gezeigt, dass die Anregung der Fluoreszenz durch das evaneszente Feld in der Grenzschicht erfolgt.

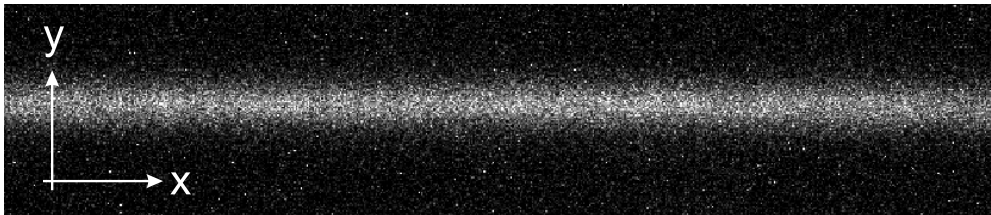


Abbildung 6.12: Fluoreszenz über dem Wellenleiter bei 50-facher Vergrößerung

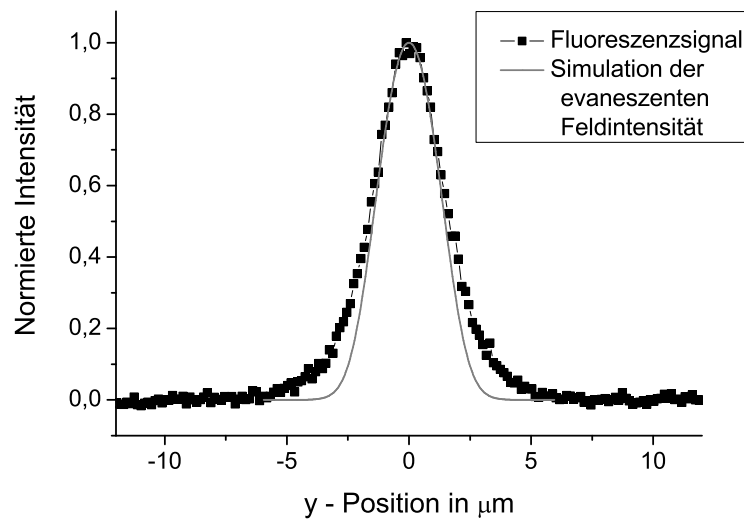


Abbildung 6.13: Fluoreszenz über dem Wellenleiter: Querschnitt in y-Richtung

Zur Bestimmung des Querschnitts der Fluoreszenzintensität wurde wiederum der in Abb. 6.5 skizzierte Versuchsaufbau verwendet. Die 1,25 mm hohe runde Kavität über dem Wellenleiter wurde mit einer 1 mM Lösung des Fluoreszenzfarbstoffs DCM in Ethanol befüllt. Zur Aufnahme des Bildes mit der CCD-Kamera wurde im Mikroskop ein 50-fach vergrößerndes Objektiv mit einer numerischen Apertur von $N.A. = 0,7$ verwendet. Die Aufnahmezeit der Kamera betrug 1 s bei maximaler Verstärkung. Das von der Kamera erfasste Bild der Fluoreszenz ist in Abb. 6.12 gezeigt. Der helle Streifen der hohen Fluoreszenzanregung befindet sich an der Position des Wellenleiters. Aus diesem Kamerasignal wurde der Verlauf der Fluoreszenzintensität im Querschnitt in y-Richtung bestimmt, dies ist in Abb. 6.13 dargestellt. Die y-Achse wurde anhand eines Durchlichtbildes des Wellenleiters bekannter Breite von $6\text{ }\mu\text{m}$ geeicht, $y = 0$ wurde in die Mitte des Wellenleiters gelegt. Um eine bessere Statistik und ein höheres Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu erhalten wurde über das Signal über 658 Querschnitte gemittelt. Zum Vergleich ist in der Abbildung zusätzlich die theoretisch berechnete evaneszente Intensitätsverteilung in y-Richtung an der Oberfläche eingezeichnet.

Offensichtlich ist, dass es nur an Positionen über dem Wellenleiter zur Fluoreszenzanregung kommt. Allerdings ist eine leichte Verbreiterung der gemessenen Kurve des Fluoreszenzlichts gegenüber dem berechneten und durch die SNOM-Messungen bestätigten Intensitätsverlauf des evaneszenten Anregungslichts erkennbar. Mit zunehmenden Abstand vom Zentrum des Wellenleiters nimmt die Abweichung immer stärker zu. Als physikalische Ursache hierfür können Streuprozesse des Fluoreszenzlichts im Flüssigkeitsvolumen angenommen werden [82, 83].

Die Übereinstimmung der Verteilung des Fluoreszenzlichts mit der theoretisch berechneten und durch die SNOM-Messungen bereits nachgewiesene Lateralverteilung des evaneszenten Felds lassen erkennen, dass die Anregung der Fluoreszenz durch das evaneszente Feld in der Grenzschicht erfolgt.

6.5 Tröpfchenevaporation

Als weiteres Beispiel für die Anwendung des Wellenleitermikroskops in der Strömungslehre wird die Evaporation eines Tröpfchens untersucht. Dazu wird ein mit DCM angefärbter Ethanoltröpfchen auf den Wellenleiter pipettiert und das Beobachtungsfeld der Kamera so eingestellt, dass sowohl beschichtete als auch unbeschichtete Bereiche des Wellenleiters beobachtet werden können. Diese Situation ist in Abb. 6.14 dargestellt: Links oben ist der Aufbau skizziert, auf dem Foto rechts darunter ist eine Aufnahme der Fluoreszenz über

dem Wellenleiter zu sehen. Hier ist bereits gut erkennbar, dass die Intensität der Fluoreszenz im beschichteten Bereich höher ist als im unbeschichteten. Die stärkste Fluoreszenzintensität ist direkt an der Kante erkennbar: Hier kommt es zur Auskopplung von Streulicht, durch das die Fluoreszenz um ein Vielfaches stärker angeregt wird. Außerdem ist sie auch nicht auf den Bereich direkt über dem Wellenleiter begrenzt. Dies ist ein Hinweis dafür, dass die Fluoreszenzanregung über dem Wellenleiter tatsächlich durch das evaneszente Feld in der Grenzschrift erfolgt.

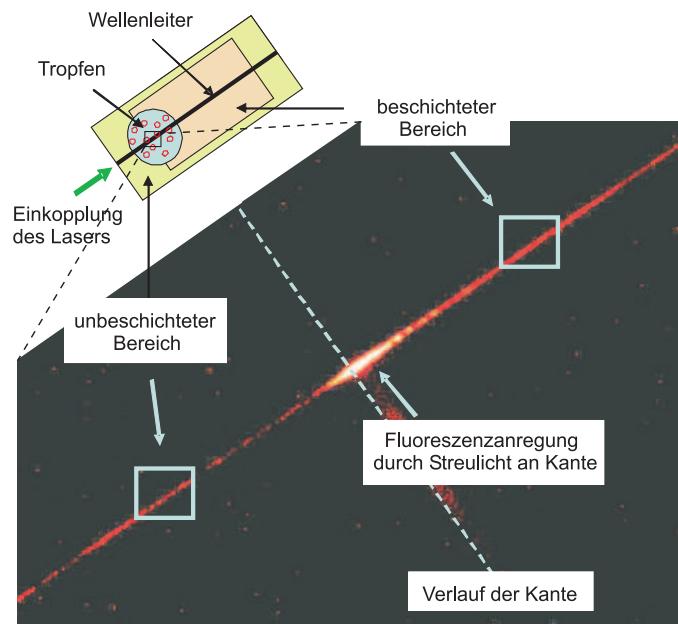


Abbildung 6.14: Fluoreszenzanregung in einem Tröpfchen im Bereich der Kante der Beschichtung

In Abb. 6.15 ist die zeitliche Entwicklung der Fluoreszenzintensität während des Verdampfungsprozesses aufgetragen. Zunächst sind die Farbstoffmoleküle im Ethanol gelöst. Je mehr der Tropfen verdampft, umso geringer wird sein Volumen. Dadurch erhöht sich die Farbstoffkonzentration, insbesondere auch an der Oberfläche zum Wellenleiter. In dieser Grenzschrift von wenigen 10 nm werden die Moleküle zum Leuchten angeregt. Bis zum Zeitpunkt $t = 21,13$ s der Messreihe steigt die Kurve nur leicht an, anschließend deutlich stärker. Hierbei konkurrieren zwei Effekte: Zum einen der tatsächliche Anstieg der Fluoreszenz durch die Erhöhung der Farbstoffkonzentration (vgl. Abschnitt 6.3), zum anderen die Abschwächung im Volumen nach Lambert-Beer, die mit zunehmender Konzentration steigt, mit abnehmender Höhe

jedoch abnimmt (vgl. Gl. 6.4). Ab dem Zeitpunkt $t = 22,75$ s der Messreihe ist das Lösungsmittel vollständig verdampft, die Farbstoffmoleküle befinden sich nun direkt an der Oberfläche, so dass es zu keinem weiteren Anstieg des Fluoreszenzsignals kommt.

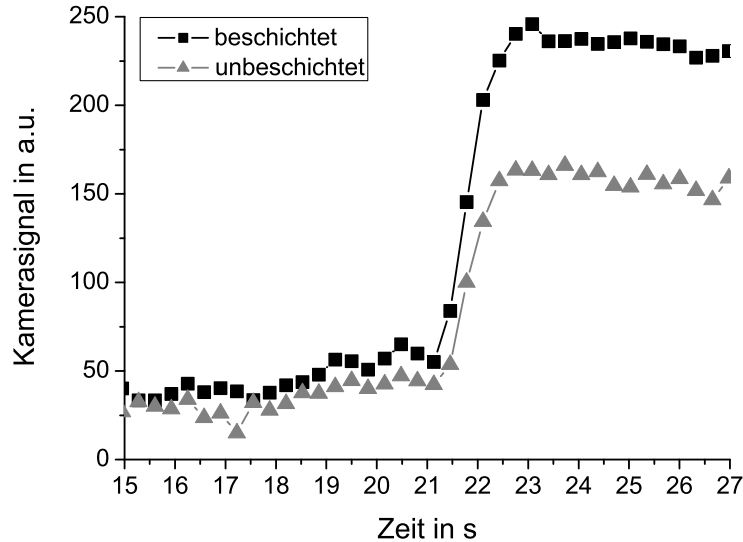


Abbildung 6.15: Zeitabhängigkeit der Tröpfchenevaporation

Ebenfalls wird aus der Grafik deutlich, dass das Fluoreszenzsignal im beschichteten Bereich höher ist als im unbeschichteten. Sowohl während der Evaporation als auch im Fall des komplett verdunsteten Tropfens liegt das Verhältnis bei $S_{\text{beschichtet}}/S_{\text{unbeschichtet}} = 1,4 \pm 0,1$.

6.6 Fluoreszenzanregung in biologischen Systemen

In diesem Abschnitt wird diskutiert, inwiefern das Wellenleiter-Mikroskop zur Untersuchung biologischer Systeme geeignet ist und wo es eine Alternative zu bereits kommerziell erhältlichen TIRFM-Systemen darstellen kann. Die TIRF-Mikroskopie hat sich als Standardmethode zur Untersuchung biologischer Austausch- und Transportprozesse durch die Zellmembran, also durch die Grenzschicht der Zelle, etabliert.

Der Vorteil der TIRF-Mikroskopie liegt (aufgrund des hohen Signal-zu-Rausch Verhältnis) in der Möglichkeit, sehr geringe Farbstoffkonzentrationen im Bereich von 10-100 nM nachzuweisen [80,84]. Dies ist insbesondere von Vorteil, da die Farbstoffaufnahme (bzw. Konzentration) bei vielen biologischen Zellen limitiert ist. Beim TIRF-Mikroskop besteht die Möglichkeit, die Eindringtiefe bei gegebener Wellenlänge durch Änderung des Lichteinfallswinkels zu variieren [76,85], wobei aber die detektierte Intensität der Fluoreszenz mit abnehmender Eindringtiefe auch abnimmt. Typische Eindringtiefen liegen in der Größenordnung von 100 nm. Weitere Vorteile des TIRF in der biologischen Anwendung sind die größere beleuchtete Fläche und die Möglichkeit, biologische Zellen an austauschbare Trägersubstrate anwachsen zu lassen.

Das Wellenleitermikroskop hingegen zeichnet sich durch seine höhere Ortsauflösung in der Grenzschicht aus. Für spezielle Untersuchungen wie z.B. die Analyse von Transportprozessen in der nur ca. 10 nm dicken Zellmembran ist diese von großem Vorteil. Um solche Messungen durchführen zu können, werden allerdings geeignete Farbstoffe benötigt, die für die Untersuchungen nicht zur Verfügung standen.

Dass Aufnahmen in biologischen Systemen mit dem Wellenleiter-Mikroskop möglich sind, zeigt Abb. 6.16. Hier wurden HEK-Zellen² mit dem Farbstoff Mitotracker[®] markiert. Dieser Farbstoff emittiert nur, wenn er in die Lipidumgebung einer Zelle, bzw. der Mitochondrien in der Zelle gebracht wird. Die Charakteristika des Farbstoffes sind im Anhang B zusammengefasst. Die Konzentration des Farbstoffes lag bei $c = 500 - 1000 \mu\text{M}$ und somit deutlich über der Empfehlung des Herstellers Invitrogen von $c = 500 \text{ nM}$.

In Abb. 6.16 sieht man im oberen Bild ein im Durchlicht aufgenommenes Bild der Zellen auf der Oberfläche des Kristalls. Die Position des Wellenleiters ist eingezeichnet (- -). Das mittlere Bild zeigt eine Aufnahme der CCD-Kamera des durch das evaneszente Feld über dem Wellenleiter angeregte Fluoreszenzsignal. Die Intensitätsverteilung im Zentrum des Wellenleiters ($y = 0$) ist als Querschnitt zum Vergleich darunter abgebildet.

Aus den Aufnahmen geht deutlich hervor, dass nur an den Stellen Fluoreszenz auftritt, an denen sich die mit Farbstoff markierten Zellen befinden. Diese ist am höchsten, wenn es sich um einzelne (flache) Zellen handelt, wie bei der Zelle rechts im Bild. Sind die Zellen in Clustern angeordnet, wird auch Fluoreszenz emittiert, diese wird aber beim Durchdringen der darüber liegenden Zellen wieder teilweise absorbiert. Dadurch ist das Fluoreszenz-

²engl.: Human Embryonic Kidney-cells = menschliche embryonale Nierenzellen. Bei der HEK-Zelllinie handelt es sich um eine vergleichsweise einfach zu handhabende Zelllinie, die in der Zellbiologie seit vielen Jahren standardmäßig eingesetzt wird.

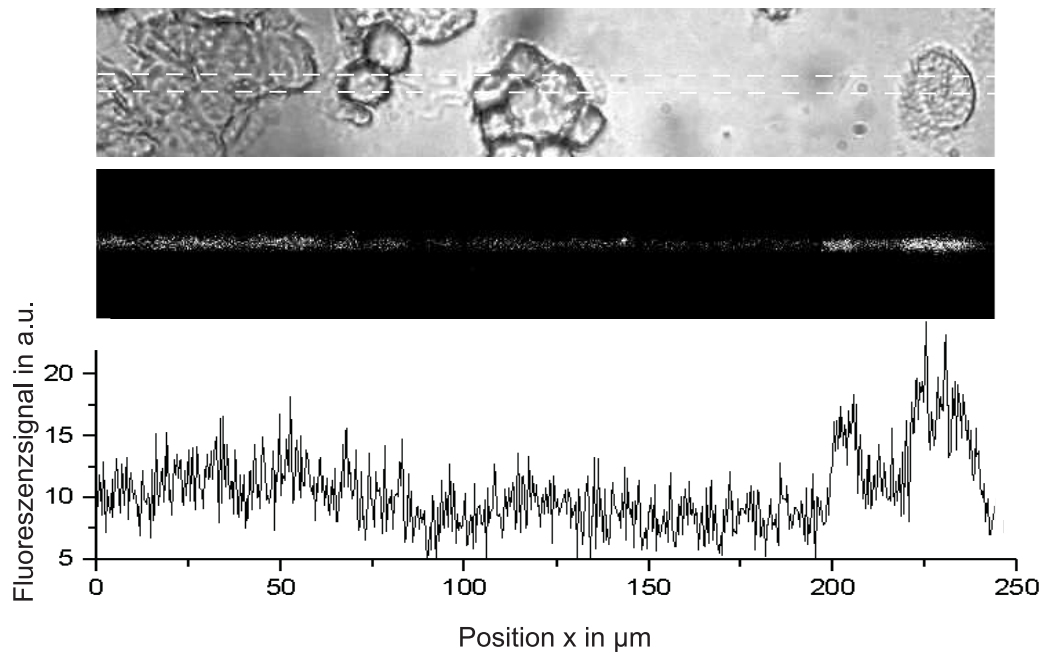


Abbildung 6.16: Aufnahme der durch das evaneszente Feld über dem Wellenleiter angeregte Fluoreszenz in biologischen Systemen. Oben: Vergleichsbild der HEK-Zellen im Durchlicht, die Umrisse des Wellenleiter sind eingezeichnet (- -), Mitte: Fluoreszenzaufnahme, unten: Fluoreszenzsignal im Querschnitt im Zentrum ($y = 0$) des Wellenleiters

signal schwächer, wie an dem Zellcluster am linken Rand und noch stärker in der Mitte zu erkennen ist. Da dieser Farbstoff auch Mitochondrien in toten Zellen markiert, kommt es auch zur Fluoreszenzanregung in abgetrennten dünnen Teilen von Zellen, wenn diese sich auf dem Wellenleiter abgesetzt haben. Ein Beispiel ist der Peak bei $x = 200 - 210 \mu\text{m}$.

Wie die Aufnahmen zeigen, ist es prinzipiell möglich, Fluoreszenz in biologischen Systemen mit dem Wellenleiter-Mikroskop zu untersuchen. Für die meisten Untersuchungen in Biologie, Biochemie und Medizin erweist sich jedoch das TIRFM aufgrund der oben genannten Anforderungen als die geeignetere Wahl.

6.7 Diskussion der Messergebnisse

Das Wellenleiterbauelement wurde in ein Mikroskopsystem integriert, wobei die evaneszenten Felder zur Fluoreszenzanregung in einer sehr geringen Schichtdicke von wenigen 10 nm genutzt wurden. Anhand von Beispielen aus Strömungslehre und Biologie konnten praktische Anwendungen demonstriert werden.

Es wurden Eichkurven für die Abhängigkeit der Fluoreszenzintensität von der Farbstoffkonzentration am Beispiel der Farbstoffe Rhodamin B und DCM aufgenommen. Diesen Kurven ermöglichen die Bestimmung einer unbekannten Konzentration einer Lösung dieses Farbstoffes. Ebenfalls geht aus den Messungen aus Abschnitt 6.3 hervor, dass die mit dem System detektierbare Minimalkonzentration im unbeschichteten Wellenleiterbereich bei $c_{min} \approx 100 \mu\text{M}$ liegt. Dies liegt um einen Faktor $10^3 - 10^4$ über dem vergleichbarer Systeme [80].

Als Anwendung in der Strömungslehre ist es möglich, anhand des Fluoreszenzsignals die Evaporation eines mit Farbstoff markierten Ethanoltröpfchens zeitlich zu charakterisieren. Hierbei konnte das Verhalten an der nur wenige 10 nm dicken Grenzschicht kurz vor dem kompletten Verdunsten beobachtet werden. Die Messung wurde simultan in beschichteten und unbeschichteten Bereichen des Wellenleiters durchgeführt, womit weiterhin die durch numerische Simulation ermittelte und durch die SNOM-Messungen bereits bestätigte Erhöhung des Fluoreszenzsignals im beschichteten Bereich bestätigt werden konnte.

Auch die Fluoreszenzanregung in biologischen Systemen konnte am Beispiel der Anregung des Farbstoffes Mitotracker® Orange in HEK-Zellen nachgewiesen werden. Problematisch erwies sich bei diesen Messungen die Tatsache, dass einige biologische Systeme nur Farbstoffkonzentrationen unterhalb der Detektionsschwelle aufnehmen können. Deswegen, aber auch weil es oft vorteilhaft ist, eine größere beleuchtete Fläche abbilden zu können, auf der sich die Zellen befinden, und wegen der Möglichkeit, die Zellen an die Grenzfläche anwachsen zu lassen, ist TIRFM in diesem Anwendungsgebiet das geeignetere Verfahren.

Eine Änderung der Eindringtiefe kann beim TIRFM über eine Variation von Reflexionswinkel oder Wellenlänge erfolgen, beim Wellenleiter ist die Variation über die Wellenlänge oder die Verwendung von Wellenleitern unterschiedlicher Tiefe möglich.

Der wesentliche Vorteil des Wellenleitermikroskops hingegen liegt in der geringeren Eindringtiefe des evaneszenten Feldes und damit in der höheren Ortsauflösung. Weiterhin besitzt es die Vorteile von integriert-optischen Sy-

systemen, die generell robust, gut transportabel, platzsparend und leicht kombinierbar mit faser-optischen Systemen sind. Insbesondere sind diese Systeme auch auf Arrays erweiterbar, die schaltbar bzw. einzeln ansteuerbar gestaltet werden können.

Als Fazit lässt sich zusammenfassen, dass für Fluoreszenzanregung in biologischen Systemen, insbesondere in solchen, in denen nur geringe Farbstoffkonzentrationen verwendet werden können, die TIRFM das geeignetere Verfahren ist. Dennoch wurde gezeigt, dass auch in biologischen Systemen evaneszente Fluoreszenzanregung durch die im Wellenleiter geführte Mode prinzipiell möglich ist. Vielversprechender erweist sich der Einsatz des Wellenleiter-Mikroskopsystems für Anwendungen in der Strömungslehre, wie am Beispiel der Tröpfchenevaporation gezeigt. Hier spielen Grenzwerte für die Farbstoffkonzentration keine Rolle und der wesentliche Vorteil des Systems der sehr geringen Eindringtiefe kann ausgenutzt werden, so dass Beobachtungen in extrem dünnen Grenzschichten durchgeführt werden können.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

7.1 Zusammenfassung

Zielsetzung der Arbeit war es, Fluoreszenz von Farbstoffmolekülen in Schichten von nur wenigen 10 nm im sichtbaren Wellenlängenbereich anzuregen. Um diese hohe örtliche Auflösung zu erhalten, wurden evaneszente Felder der in wellenleitenden Strukturen in Lithiumniobat geführten Moden genutzt. Der für die Auflösung relevante Parameter ist die Eindringtiefe (der Intensität) des exponentiell abfallenden evaneszenten Feldes [76]; diese ist definiert als der Abstand von der Grenzfläche, an dem die Intensität auf $1/e$ gegenüber der Intensität an der Grenzfläche abgefallen ist¹. Um die Intensität an der Grenzfläche unter Beibehalten der extrem kurzen Eindringtiefe zu erhöhen, wurden Teile der Wellenleiter mit einem hochbrechenden dielektrischen Film beschichtet. Auf diese Weise kann die Fluoreszenzanregung erhöht werden, während die Ortsauflösung erhalten bleibt.

Die in Kap. 4 beschriebene Fertigung der in Lithiumniobat titaneindiffundierten Wellenleiter weniger μm Breite mit standard-lithographischen Methoden basierte auf den in Kapitel 3 durchgeführten Simulationen. Aus diesen ging hervor, dass mit den gegebenen Materialien und Geometrien Eindringtiefen der in den Wellenleiter geführten Moden in der Größenordnung von nur wenigen 10 nm erreicht werden können.

Durch eine dünne, hochbrechende TiO_2 -Beschichtung kann die Intensität in der Grenzschicht bei optimalen Parametern für Brechungsindex und Schichtdicke bis auf das 50-fache erhöht werden. Die numerischen Simula-

¹Ursprünglich bezog sich die Definition der Eindringtiefe auf die elektrische Feldstärke, insbesondere in Bezug auf Nahfeldmikroskopie und Fluoreszenzanregung wird aber häufig in der Literatur die auf die Intensität bezogene verwendet.

tionen zeigten, dass im Rahmen der numerisch bedingten Auflösung kein Einfluss auf die Eindringtiefe durch den Brechungsindex oder die Dicke der Beschichtung feststellbar war. Wurde allerdings ein Deckmedium mit höherem Brechungsindex verwendet, so erhöhte sich auch die Eindringtiefe.

Die durch Beschichtung hervorgerufene Intensitätserhöhung in der Grenzschicht nahm mit steigendem Brechungsindex der Schicht, höherer Schichtdicke sowie höherem Brechungsindex des Deckmediums zu.

Zur experimentellen Charakterisierung der evaneszenten Felder wurde ein SNOM aufgebaut und verwendet, dies wurde in Kap. 5 dargelegt. Ein bereits am Institut vorhandenes AFM wurde so modifiziert und erweitert, dass es ein geeignetes Instrument zur Messung der evaneszenten Felder der in den Wellenleitern geführten Moden darstellte, insbesondere zur Messung der Eindringtiefe. Hierzu wurde eine angespitzte Glasfaser als optische Nahfeldsonde implementiert, mit der die Probe abgerastert wurde. Der Abstand zur Oberfläche wurde mittels des elektrischen Signals eines Schwingquarzes detektiert.

Untersucht wurden die evaneszenten Felder in einem unbeschichteten Bereich des Wellenleiters an der Grenzfläche Kristall/Luft sowie in einem Bereich mit einer 75 nm dicken hochbrechenden TiO_2 -Schicht an der Grenzfläche Beschichtung/Luft. Die in Kap. 3 diskutierten durchgeführten Simulationen hatten ergeben, dass sich trotz der durch die Beschichtung verursachten veränderten Feldverteilung im Wellenleiter und folglich auch an der Grenzfläche, die Eindringtiefe des evaneszenten Feldes im Rahmen der Messgenauigkeit nicht verändern würde. Dies konnte im Rahmen dieser Arbeit zum ersten Mal durch SNOM-Messungen verifiziert werden [16].

Der berechnete Wert für die Eindringtiefe sowie die laterale Intensitätsverteilung stimmen mit den Literaturwerten überein [72, 73]. Die mit dem SNOM gemessenen Eindringtiefen überschreiten diesen Wert um einen Faktor von 2 im beschichteten Fall und um einen Faktor von 2,7 im unbeschichteten Fall. Dennoch liegen sowohl gemessene als auch simulierte Werte für die Eindringtiefe in beiden Bereichen in der Größenordnung von nur wenigen 10 nm.

Im Fall des lateralen Scans an der Oberfläche stimmen die gemessenen und die theoretischen Kurven sehr gut überein. Es konnte ebenfalls gezeigt werden, dass durch die Beschichtung des Wellenleiters mit einer dünnen Metalloxidschicht die Intensität an der Grenzfläche um eine Größenordnung (Faktor 12-15) erhöht werden kann. Auch dies ist konsistent mit den theoretischen Berechnungen.

Damit wurde die Erhöhung der Intensität an der Grenzfläche einer integriert optischen Nahfeld-Lichtquelle durch Erhöhung des evaneszenten Anteils der geführten Mode bei extrem kurzen Eindringtiefen realisiert. Die

Vermessung der so erhöhten evaneszenten Feldintensitäten und deren Charakterisierung mit der SNOM-Technik wurden auf diese Weise zu ersten Mal durchgeführt [16, 17, 71].

In einem weiteren Schritt wurde, wie in Kap. 6 beschrieben, das Wellenleiterbauelement in ein Mikroskopsystem integriert, wobei die evaneszenten Felder als optische Nahfeld-Lichtquelle zur Fluoreszenzanregung in einer sehr geringen Schichtdicke von wenigen 10 nm genutzt wurden. Anhand von Beispielen aus Strömungslehre und Biologie konnten praktische Anwendungen demonstriert werden.

In biologischen Systemen konnte die Fluoreszenzanregung am Beispiel der Anregung des Farbstoffes Mitotracker® Orange in HEK-Zellen nachgewiesen werden. Hiermit konnte gezeigt werden, dass auch in biologischen Systemen evaneszente Fluoreszenzanregung durch die im LiNbO_3 -Wellenleiter geführte Mode prinzipiell möglich ist [86]. Problematisch erwies sich bei diesen Messungen die Tatsache, dass die aus den Eichmessungen hervorgegangene minimal detektierbare Farbstoffkonzentration um einen Faktor $10^3 - 10^4$ über dem vergleichbarer Systeme [80] liegt und einige biologische Systeme nur Farbstoffkonzentrationen unterhalb der hier ermittelten Detektionsschwelle aufnehmen können.

Vielversprechender erweist sich der Einsatz des Wellenleiter-Mikroskopsystems für Anwendungen in der Strömungslehre, wie am Beispiel der Tröpfchenevaporation gezeigt. Der wesentliche Vorteil des Systems der sehr geringen Eindringtiefen und damit der hohen Ortsauflösung kann ausgenutzt werden, so dass Beobachtungen in extrem dünnen Grenzschichten durchgeführt werden können.

Als Anwendung in der Strömungslehre war es möglich, die Intensität des Fluoreszenzsignals bei der Evaporation eines mit Farbstoff markierten Ethanoltröpfchens zeitlich zu charakterisieren. Hierbei konnte anhand des Fluoreszenzsignals das Evaporationsverhalten des Tröpfchens an der nur wenige 10 nm dicken Grenzschicht kurz vor dem kompletten Verdunsten beobachtet werden. Die Messung wurde simultan im beschichteten und im unbeschichteten Bereich des Wellenleiters durchgeführt, womit ebenfalls die durch numerische Simulation vorhergesagte und durch die SNOM-Messungen bereits nachgewiesene Erhöhung des evaneszenten Feldes an der Grenzschicht durch die Erhöhung des Fluoreszenzsignals im beschichteten Bereich bestätigt werden konnte [86].

Die Evaneszentfelderhöhung integriert optischer Nahfeldsensoren hat sich in den letzten Jahren aufgrund der Vielzahl der Anwendungsmöglichkeiten zu einem wichtigen Forschungsthema entwickelt. Üblicherweise wird sie durch

die Erzeugung von Oberflächenplasmonen in einer metallischen Beschichtung realisiert [10–12]. Als Alternativansatz wurde von Quigley et al. [13] vorgeschlagen, die Evaneszentfelderhöhung durch Aufbringen einer hochbrechenden dielektrischen Beschichtung zu erzielen. Diese Methode hat den Vorteil, dass die hohe optische Tiefenauflösung erhalten bleibt.

Dieser Ansatz wurde in dieser Arbeit zum ersten Mal erfolgreich experimentell an mit TiO_2 beschichteten Wellenleitern in LiNbO_3 realisiert. Hierbei konnte der Effekt der Evaneszentfelderhöhung wellenleitender Strukturen durch eine hochbrechenden dielektrischen Beschichtung experimentell mit der SNOM-Technik nachgewiesen werden. Zur weiteren Beschreibung des Effekts wurden ausführliche numerischen Berechnungen des vorliegenden Systems durchgeführt. In einem zusätzlichen Schritt wurde der praktische Einsatz der hergestellten Wellenleiterbauelemente mit erhöhtem Evaneszentfeld anhand von interdisziplinären Anwendungsbeispielen demonstriert.

Damit konnte erfolgreich gezeigt werden, dass das in der Arbeit experimentell umgesetzte Konzept der Evaneszentfelderhöhung integriert optischer Sensoren durch eine hochbrechende dielektrische Beschichtung eine Alternative mit dem Vorteil der höheren optischen Tiefenauflösung zu dem bisher realisierten der Oberflächenplasmonenanregung in metallischen Beschichtungen darstellt.

7.2 Ausblick

In Hinblick auf weiterführende Forschungsarbeiten bieten sich zwei Ansätze: Technische Verbesserungen und Erweiterungen sowie eine Ausdehnung der Anwendungsmöglichkeiten.

Als technische Verbesserung ist zunächst eine Optimierung der Produktionsparameter (wie Dicke und Brechungsindex der Beschichtung) denkbar, so dass die numerisch berechnete Erhöhung der Intensität an der Grenzfläche auf das (als Maximum berechnete) 50-fache realisiert werden kann.

Des weiteren kann die Geometrie der Wellenleiterbauelemente auf Arrays erweitert werden. Diese können z.B. durch gezielte Fasereinkopplung in einzelne Kanäle schaltbar gestaltet werden. Dadurch kann eine sequenzielle Evaneszentfeldanregung erfolgen, was insbesondere für Anwendungen in der Strömungslehre attraktiv ist.

Außerdem handelt es sich bei Lithiumniobat um ein elektro-optisches Material. Durch Anbringen von Elektroden und Anlegen von Spannung kann der Brechungsindex und damit die Eindringtiefe verändert werden. Auch durchstimmbare Bauelemente sind denkbar, bei denen Brechungsindex und somit

die Eindringtiefe kontinuierlich verändert werden können.

Als weitere Anwendungsmöglichkeit liegt es im Rahmen des durchgeführten Projekts innerhalb des Graduiertenkolleg nahe, neu entwickelte Farbstoffe anzuregen und zu testen, die sich speziell an die Membran biologischer Zellen anlagern. Damit wäre es beispielsweise möglich, Transportprozesse in Kanälen in der Zellmembran zu verfolgen.

Vor allem ist die präsentierte Technik aber interessant für Anwendungen an Tropfen in der Strömungslehre, beispielsweise um deren Fließ- oder Verdunstungsverhalten zu charakterisieren.

Summary

The primary goal of this study was the excitation of fluorescent dyes in layers of only a few 10 nm thickness within the visible wavelength range. To obtain this high spatial resolution, evanescent fields of modes guided in waveguiding structures in lithium niobate were utilized. The parameter relevant for the spatial resolution is the penetration depth (of the intensity) of the exponentially decaying evanescent field [76]. This is defined as the distance from the interface, where the intensity has decayed to $1/e$ compared to the intensity at the interface². In order to enhance the intensity at the interface while keeping the penetration depth extremely short, parts of the waveguides were coated by an high refractive index dielectric film. Fluorescence excitation could thus be enhanced while maintaining the high spatial resolution.

The fabrication of the titanium indiffused waveguides in lithium niobate of a few μm width by standard lithographic methods, as described in Chapter 4, was based on the numerical simulations carried out in Chapter 3. These calculations demonstrated that with the given materials and geometries, penetration depths of the guided modes in the order of few 10 nm could be achieved.

By the addition of a thin, high refractive index coating of TiO_2 the intensity at the interface could be enhanced up to a factor of 50 by choosing optimal parameters of refractive index and thickness of the coating. The numerical simulations indicated no influence on the penetration depth of either the refractive index or the thickness of the coating within the numerical resolution. If however a covering medium with higher refractive index was used, the numerical simulations showed an increase in penetration depth.

The intensity enhancement in the boundary layer caused by the coating amplified with increasing refractive index of the coating, as well as with higher refractive index of the covering medium.

²Initially the definition referred to the electric field strength. Especially with regard to near-field microscopy and fluorescence excitation the definition relating to intensity is commonly used in literature.

A Scanning Near-Field Optical Microscope (SNOM) was built and employed to experimentally characterize the evanescent fields, as described in Chapter 5. An Atomic Force Microscope (AFM) that was already in place at the institute was modified and upgraded to become a tool appropriate to measure the evanescent fields of the waveguides' modes and especially their penetration depths. For this purpose a tapered fiber tip was implemented as a near-field optical probe, and used to scan the waveguide sample. The distance between probe and sample was detected by means of the electric signal of an oscillating tuning fork.

The investigations of the evanescent fields were performed at an uncoated region of the waveguide at the interface of crystal and air as well as at region coated by a 75 nm thick TiO_2 -film at the interface of coating and air. The calculations performed and discussed in Chapter 3 had demonstrated that despite a change of the electric field distribution in the waveguide and thus at the interface caused by the coating, no change in the penetration depths of the evanescent field would occur within the accuracy of measurement. This research was able to verify this for the first time through the SNOM measurements [16].

The calculated value for the penetration depth, as well as the lateral intensity distribution, were in strong agreement with the existing literature [72,73]. The values measured by the SNOM exceeded the calculated ones by a factor 2 in the coated and a factor 2.7 in the uncoated case. However, both measured and calculated values for the penetration depth in both regions were in the order of only a few 10 nm.

In case of the lateral surface scan both measured and theoretical curves were in agreement. It was also demonstrated that by covering the waveguide with a thin metal oxide film the intensity at the interface could be enhanced by a one order of magnitude (factor 12-15). This was also consistent with the theoretical calculations.

An enhancement of the intensity at the interface of an integrated near-field optical light source was realized by an enhancement of the proportion of the evanescent part of the mode at extremely short penetration depths. The measurements of this enhanced evanescent field intensities and their characterization were performed for the first time by applying the SNOM-technique [16,17,71].

In a further step, as outlined in Chapter 6, the waveguiding device was embedded in a microscope system, where the evanescent fields were used as a near-field optical light source to excite fluorescence in thin layers of a few 10 nm. Examples of practical applications in fluid mechanics and biology were

presented:

Fluorescence excitation in biological systems was demonstrated by the example of excitation of the dye Mitotracker[®] Orange in HEK-cells. It could be shown that evanescent fluorescence excitation in biological systems by the mode guided in a waveguide in LiNbO₃ is possible in principle [86]. The difficulty for fluorescence excitation in biological systems lied in the fact that the minimum detectable concentration of the dye determined by calibration measurements was $10^3 - 10^4$ times higher than the one of comparable systems and that some biological systems could only take in dye concentrations below the detection threshold determined in this research.

The usage of the waveguide microscope for applications in fluid mechanics turned out to be more promising as shown by the example of droplet evaporation. The key advantage of the system of the short penetration depths and consequently the high spatial resolution could be utilized so that observations in extremely thin boundary layers could be performed.

As an application in fluid mechanics it was possible to characterize the temporal behaviour of the intensity of the fluorescence signal during the evaporation of an ethanol droplet labelled with a fluorescent dye. By means of the fluorescence signal the evaporation behaviour of the droplet was monitored at the boundary layer of only a few 10 nm. This measurement was performed simultaneously in both uncoated and coated regions of the waveguide. By the measurement of the increase of the fluorescence intensity in the coated region [86], it was possible to confirm the calculated enhancement of the evanescent fields, that were previously verified by the SNOM measurements.

Evanescent field enhancement of integrated optical near-field sensors has become an important research subject in recent years due to its variety of application possibilities. Commonly it is realized by the generation of surface plasmons in a metallic coating [10–12]. As an alternative approach Quigley et al. [13] proposed an evanescent field enhancement due to a high refractive index dielectric coating. The advantage of this method lies in the preservation of the high optical resolution in depth.

This approach was successfully experimentally realized for the first time in this research at a waveguide in LiNbO₃ coated by a TiO₂-film. Here the effect of evanescent field enhancement at waveguiding structures by a high refractive index dielectric coating was experimentally verified by the SNOM-technique. For further description of the effect detailed numerical calculations of the system were carried out. As an additional step the practical application of the waveguiding devices with enhanced evanescent fields were demonstrated with several interdisciplinary examples.

It was successfully shown that the concept of evanescent field enhancement of integrated optical sensors by a high refractive index dielectric coating, which was experimentally realized in this research, provides an alternative (with the advantage of higher optical resolution in depth) to the so far realized one of surface plasmon excitation in metallic coatings.

Anhang A

Eigenschaften von Lithiumniobat

Lithiumniobat besitzt die Strukturformel LiNbO_3 und wird auch als Lithium-Niob-Oxid bezeichnet. Es kommt in der Natur nicht vor und wird mit dem Czochralski-Verfahren hergestellt [87,88]. Es ist ein kristallines Material mit trigonalem Kristallsystem (Punktgruppe 3m). Seine Dichte liegt bei $4,64 \text{ g/cm}^3$, die Schmelztemperatur bei 1275°C [89].

LiNbO_3 ist transparent für Wellenlängen von 420 bis 5200 nm. Es ist stark doppelbrechend: Für $\lambda = 532 \text{ nm}$ ist $n_e = 2,23$ und $n_o = 2,32$ [38,90].

LiNbO_3 besitzt elektro-optische, piezoelektrische, nichtlinear-optische und photoelastische Eigenschaften. Unterhalb der Curietemperatur von 1140°C ist es ferroelektrisch. Auf diesen physikalischen Eigenschaften basieren vielfältige Anwendungen für die Laserfrequenzverdopplung, nichtlineare Optik, als Pockels-Zellen, optisch parametrische Oszillatoren, optische Schalter etc. [43]

Mit Eisen oder Kupfer dotiertes Lithiumniobat weist eine hohe photorefraktive Sensitivität auf und ist gut geeignet für holographische Speicherung in Langzeitanwendungen.

Die Herstellung wellenleitender Strukturen geschieht üblicherweise durch Eindiffusion von Titanionen oder durch Protonenaustausch. Beides sind etablierte und gut kontrollierbare Herstellungsprozesse. Diese Wellenleiter zeichnen sich durch geringen Verluste, chemische und mechanische Widerstandsfähigkeit, die Möglichkeit, nichtlineare Effekte auszunutzen und nicht zuletzt die Tatsache aus, dass relativ große Kristalle preisgünstig kommerziell zu erwerben sind [14].

Die Anwendung für integriert optische Komponenten liegt neben der Sensorik insbesondere im Telekommunikationsbereich. Insbesondere auch durch die Kombination mit den photorefraktiven Eigenschaften der dotierten Kristalle lassen sich Elemente wie Schalter, Filter oder Verzweiger realisieren.

Anhang B

Verwendete Fluoreszenzfarbstoffe und -filter

Rhodamin B und DCM

Als Rhodamin B (oder auch Rhodamin 610) wird 2-[6-(Diethylamino)-3-(diethylimino)-3H-xanthen-9-yl]benzoesäure bezeichnet ($C_{28}H_{31}N_2O_3Cl$). Die Abkürzung DCM steht für 4-Dicyanmethylen-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4H-pyran ($C_{19}H_{17}N_3$). Die Strukturformeln sind in Abb. 7.1 und Abb. 7.2 dargestellt. Sie wurden ebenso wie die Absorptions- und Emissionsspektren mit dem PhotoChemCAD Paket von Lindsey [91] erstellt, die den Daten zugrunde liegenden Messungen sind ebenfalls in der Arbeit von Lindsey [91] zu finden.

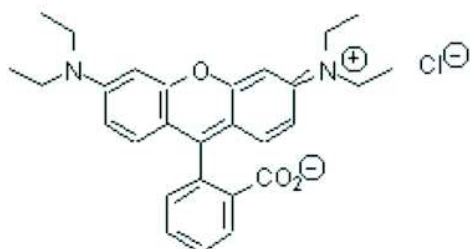


Abbildung 7.1: Strukturformel von Rhodamin B

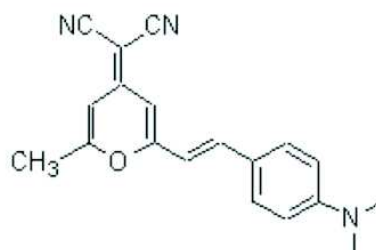


Abbildung 7.2: Strukturformel von DCM

In Abb. 7.3 und Abb. 7.4 sind die Spektren für Rhodamin B aufgetragen, in Abb. 7.5 und Abb. 7.6 die für DCM. Die Spektren von DCM in Ethanol verlaufen fast identisch zu den in Abb. 7.5 und 7.6 geplotteten von DCM in Methanol [92]. Die relevanten Absolutwerte sind für DCM in Ethanol sowie weitere wesentliche Daten für die Fluoreszenzemission der beiden Farbstoffe im Vergleich in Tabelle 7.1 zusammengefasst.

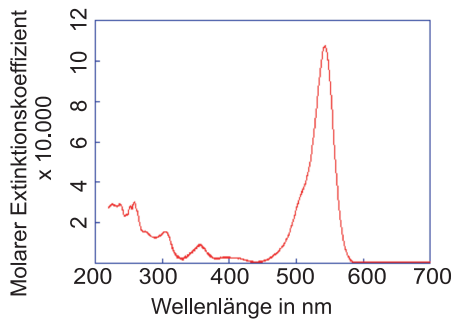


Abbildung 7.3: Absorptionsspektrum von Rhodamin B in Ethanol

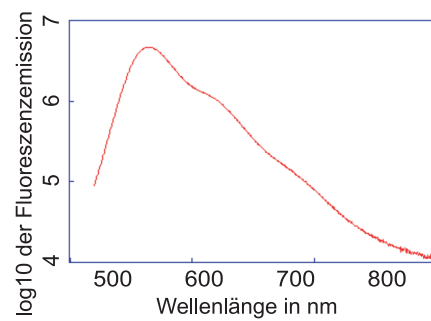


Abbildung 7.4: Emissionsspektrum von Rhodamin B in Ethanol

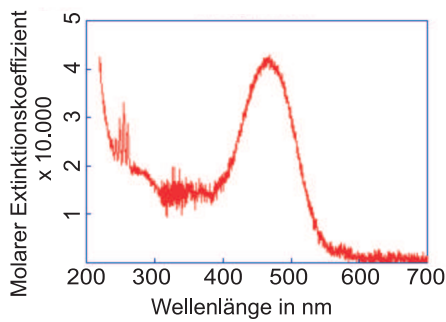


Abbildung 7.5: Absorptionsspektrum von DCM in Methanol

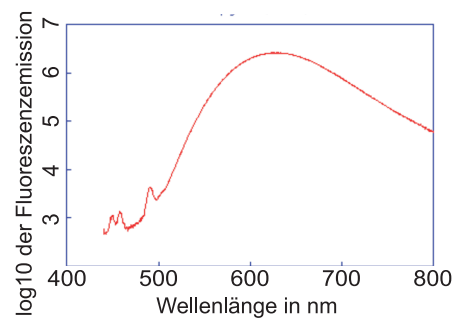


Abbildung 7.6: Emissionsspektrum von DCM in Methanol

	Rhodamin B	DCM	Einheit	Quelle
Molare Masse M	479,02	303,96	g/mol	[93]
Absorptionsmaximum in ETOH	552	472	nm	[93]
Molarer Absorptionskoeffizient α (@ Maximum)	$10,7 \cdot 10^4$	$4,25 \cdot 10^4$	l/mol/cm	[93]
Fluoreszenzmaximum in ETOH	580	644	nm	[93]
Quanteneffizienz Φ	0,7	0,43		[94,95]

Tabelle 7.1: Vergleich der Fluoreszenzfarbstoffe Rhodamin B und DCM

MitoTracker[®] Orange

Bei MitoTracker[®] Orange der Firma Molecular Probes[™] handelt es sich um einen Farbstoff, der selektiv Mitochondrien in der Zelle anfärbt.

In Abb. 7.7 ist die chemische Veränderung des MitoTracker Orange CM-H2TMRos anhand der Strukturformel dargestellt: Wenn mikromolare Mengen des Farbstoffes in eine Zelle inkubiert werden, erfolgt ein passiver Transport des Farbstoffes durch die Plasmamembran. Dabei oxidiert er zum fluoreszierenden MitoTracker Orange CMTMRos, der sich in den Mitochondrien anlagert. Dort reagiert er mit Thiolgruppen an Proteinen sowie mit Peptiden, so dass er auch nach einer Fixierung mit Aldehyden bestehen bleibt.

In Abb. 7.8 sind das normierte Absorptions- und Emissionsspektrum des MitoTracker Orange in Ethanol aufgetragen. Das Absorptionsmaximum liegt bei $\lambda = 554 \text{ nm}$, das Emissionsmaximum bei $\lambda = 576 \text{ nm}$ ³.

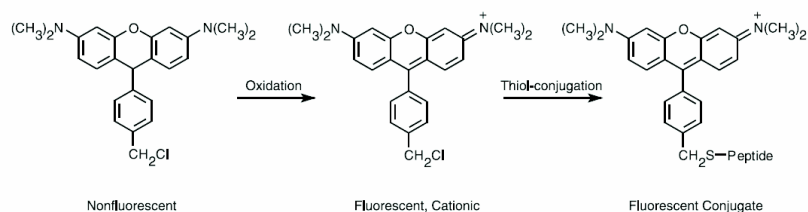


Abbildung 7.7: Strukturformeln des MitoTracker beim Anfärben der Mitochondrien

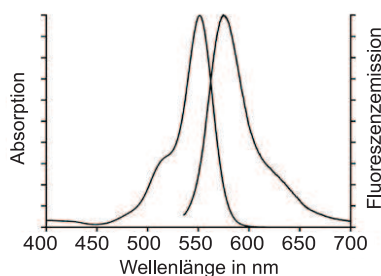


Abbildung 7.8: Normiertes Absorptions- und Emissionsspektrum des MitoTracker Orange in Ethanol

³s. Datenblatt Molecular Probes[™], MitoTracker[®]Orange CM-H2TMRos

Filtercharakteristik

In Abb. 7.9 ist das Transmissionsspektrum des verwendeten Fluoreszenzfilters dargestellt. Es wurde aufgenommen mit dem Spektrometer AvaSpec-1024-2 von Avantes. Wellenlängen unterhalb der Kante bei $\lambda = 570 \pm 15$ nm werden geblockt (z.B. die in den Experimenten häufig verwendete Anregungswellenlänge des frequenzverdoppelten Nd:YAG-Lasers von $\lambda = 532$ nm), Wellenlängen oberhalb der Kante, also große Teile der Fluoreszenzspektren, werden transmittiert.

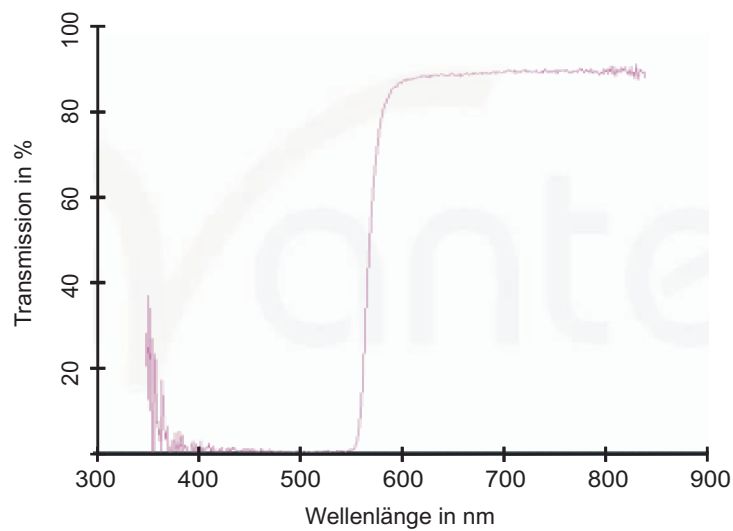


Abbildung 7.9: Transmissionsspektrum des Farbfilters

Literaturverzeichnis

- [1] J. Dakin, B. Culshaw. *Optical fiber sensors*. Artech House (1997).
- [2] G. Boisdé, A. Harmer. *Chemical and Biochemical Sensing with optical Fibers and Waveguides*. Artech House (1996).
- [3] K. Grattan, T. Sun. Fiber optic sensor technology: an overview. *Sens. Act. A* **82** (2000) 40.
- [4] R. Kunz. Miniature integrated optical modules for chemical and biochemical sensing. *Sens. Act. B* **38** (1997) 13.
- [5] R. Hunsperger. *Integrated Optics (Theory and Technology)*. Springer (2002).
- [6] M. Tabib-Azar. *Integrated optics, microstructures, and sensors*. Kluwer Academic Publishers (1995).
- [7] J. R. Lakowicz. *Principles of Fluorescence Spectroscopy*. Springer (2006).
- [8] C. Taitt, G. Anderson, F. Ligler. Evanescent wave fluorescence biosensors. *Biosens. Bioel.* **20** (2005) 2470.
- [9] D. Axelrod. Total Internal Reflection Fluorescence Microscopy. In P. Török, F. Kao, Herausgeber, *Optical Imaging and Microscopy: Techniques and Advanced Systems*. Springer (2007) .
- [10] W. Barnes, A. Dereux, T. Ebbesen. Surface plasmon subwavelength optics. *Nature* **424** (2003) 824.
- [11] J. Homola, S. Yee, G. Gauglitz. Surface plasmon resonance sensors: review. *Sens. Act. B* **54** (1999) 3.
- [12] R. Harris, J. Wilkinson. Waveguide surface plasmon resonance sensors. *Sens. Act. B* **29** (1995) 261.

- [13] G. Quigley, R. Harris, J. Wilkinson. Sensitivity enhancement of integrated optical sensors by use of thin high-index films. *Appl. Opt.* **38** (1999) 6036.
- [14] D. Kip. Photorefractive waveguides in oxide crystals: fabrication, properties, and applications. *Appl. Phys. B* **67** (1998) 131.
- [15] T. Tamir, Herausgeber. *Titanium-Diffused Lithium Niobate Waverguide Devices*. Springer (1990).
- [16] J. Hahn, C. Rüter, F. Fecher, J. Petter, D. Kip, T. Tschudi. Measurement of the enhanced evanescent fields of integrated optical near-field sensors. *Appl. Opt.* **47** (2008) 2357.
- [17] J. Hahn, F. Fecher, J. Petter, T. Tschudi. Sensitivity enhancement of integrated optical near field sensors. *In: Proc. SPIE* **6995** (2008) 699509.
- [18] D. Pohl. Near-Field Optics and the Surface Plasmon Polariton. In S. Kawata, Herausgeber, *Near-Field Optics and Surface Plasmon Polaritons*. Springer (2001) .
- [19] M. Paesler, P. Moyer. *Near-field optics*. John Wiley & Sons (1996).
- [20] S. Lipson, H. Lipson, D. Tannhauser. *Optik*. Springer (1997).
- [21] C. Girard, A. Dereux. Near-field optics theories. *Rep. Prog. Phys.* **59** (1996) 657.
- [22] I. Newton. *Optik*. Friedr. Vieweg & Sohn (1983).
- [23] F. de Fornel. *Evanescent waves*. Springer (2001).
- [24] H. Lotsch. Beam displacement at total internal reflection: the Goos-Hänchen effect, I. *Optik* **32** (1970) 116.
- [25] H. Lotsch. Beam displacement at total internal reflection: the Goos-Hänchen effect, II. *Optik* **32** (1970) 189.
- [26] H. Lotsch. Beam displacement at total internal reflection: the Goos-Hänchen effect, III. *Optik* **32** (1971) 319.
- [27] H. Lotsch. Beam displacement at total internal reflection: the Goos-Hänchen effect, IV. *Optik* **32** (1971) 553.

- [28] C. Imbert. Calculation and experimental proof of the transverse shift induced by total internal reflection of a circularly polarized light beam. *Phys. Rev. D* **5** (1972) 787.
- [29] O. C. de Beauregard. Translational inertial spin effect with photons. *Phys. Rev.* **139** (1965) 1443.
- [30] A.W.Snyder, J. Love. Goos-Hänchen shift. *Appl. Opt.* **15** (1976) 236.
- [31] I. Court, F. von Willisen. Frustrated total internal reflection and application of its principle to laser cavity design. *Appl. Opt.* **3** (1964) 719.
- [32] L. Salomon, F. de Fornel, J. Goudennet. Sample—tip coupling efficiencies of the photon—scanning tunneling microscope. *J. Opt. Soc. Am. A* **8** (1991) 2009.
- [33] B. Saleh, M. Teich. *Fundamentals of Photonics*. John Wiley & Sons (1991).
- [34] K. Thyagarajan, A. Ghatak. Integrated Optic Devices. In B. Pal, Herausgeber, *Fundamentals of fibre optics in telecommunications and sensor systems*. New Age, Int. (1997) .
- [35] J. Vollmer, J. P. Nisius, P. Hertel, E. Krätzig. Refractive-index profiles of LiNbO₃-Ti waveguides. *Appl. Phys. A* **32** (1983) 125.
- [36] J. Hukriede, D. Runde, D. Kip. Fabrication and application of holographic Bragg gratings in lithium niobate channel waveguides. *J. Phys. D: Appl. Phys* **36**.
- [37] H. R. Schwarz, N. Köckler. *Numerische Mathematik*. Vieweg + Teubner (2006).
- [38] U. Schlarp, K. Betzler. Refractive index of lithium niobate as a function of temperature, wavelength and composition: A general fit. *Phys.Rev. B* **48** (1993) 15613.
- [39] Almaz Optics, Inc. <http://www.almazoptics.com>.
- [40] P. Löbl, M. Huppertz, D. Mergel. Nucleation and growth in TiO₂ films prepared by sputtering and evaporation. *Thin Solid Films* **251** (72) 1994.
- [41] D. Lide. *Handbook of Chemistry and Physics (80th ed.)*. CRC Press LLC, Boca Raton (1999).

- [42] S. Stankovic. *Diffraktive optische Elemente für moderne mikrooptische Systeme*. Dissertation, Technische Universität Darmstadt (2002).
- [43] P. Arora. *Design, Realization and Applications of Dynamically Controllable Bragg Gratings*. Dissertation, Technische Universität Darmstadt (2008).
- [44] N. H. Zhu, X. S. Zheng, Y. K. Lin, X. Yu. Calculation of the field distribution of a Ti:LiNbO₃ optical waveguide and its applications. *Opt. Quant. El.* **24** (1992) 737.
- [45] D. Pohl, W. Denk, M. Lanz. Optical stethoscopy: Image recording with resolution $\lambda/20$. *Appl. Phys. Lett.* **44** (1984) 651.
- [46] N. van Hulst, N. de Boer, B. Bölger. Scanning near field optical microscopy. *Trans. Roy. Microsc. Soc.* **1** (1990) 239.
- [47] E. Betzig. Principles and applications of near-field scanning optical microscopy. In D. Pohl, D. Courjon, Herausgeber, *Near field optics* (1993) .
- [48] D. Courjon, K. Saryeddine, M. Spajer. Scanning tunneling optical microscopy. *Opt. Comm.* **71** (1989) 23.
- [49] M. Balistreri, J. Korterik, L. Kuipers, N. van Hulst. Photon scanning tunneling optical microscopy with a three-dimensional multiheight imaging mode. *Appl. Phys. Lett.* **77** (2000) 4092.
- [50] J. Guerra. Photon tunneling microscopy of diamond-turned surfaces. *Appl. Opt.* **32** (1993) 24.
- [51] T. David, C. Chicanne, N. Richard, J. Krenn, F. Scheurer, K. Ounadjela, M. Hen, Y. Lacroute, J. Goudonnet. Application to dielectric, metallic, and magnetic samples of transmission mode scanning near field optical microscope with normal force distance regulation on bent optical fibres. *Rev. Sci. Instrum.* **70** (1999) 4587.
- [52] V. Subramaniam, A. Kirsch, T. Jovin. Cell biological applications of scanning near-field optical microscopy (SNOM). *Cell. Mol. Biol.* **44** (1998) 689.
- [53] F. Fecher. *Aufbau eines optischen Rasternahfeldmikroskops zur Messung evaneszenter Felder*. Diplomarbeit, Technische Universität Darmstadt (2007).

- [54] E. Hecht. *Optik*. Addison-Wesley (1989).
- [55] E. Synge. A suggested method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region. *The London, Edinburgh, and Dublin philosophical magazine and journal of science* **6** (1928) 356.
- [56] R. Reddick, R. Warmack, T. Ferrell. New form of scanning optical microscopy. *Phys. Rev. B* **39** (1989) 767.
- [57] N. van Hulst, N. de Boer, B. Bölger. An evanescent-field optical microscope. *J. Microscopy* **163** (1991) 117.
- [58] E. Betzig, J. Trautmann, T. Harris, J. Weiner, R. Kostelak. Breaking the diffraction barrier: Optical microscopy on a nanometric scale. *Science* **251** (1991) 1468.
- [59] N. F. van Hulst, F. B. Segerink, F. Achten, B. Bölger. Evanescent-field optical microscopy: Effects of polarization, tip shape and radiative waves. *Ultramicroscopy* **42-44** (1992) 416.
- [60] R. Reddick, R. Warmack, D. Chilcott, S. Sharp, T. Ferrell. Photon scanning tunneling microscopy. *Rev. Sci. instrum.* **61** (1990) 3669.
- [61] F. de Fornel, L. Salomon, P. Adam, E. Bourillot, J. P. Goudonnet. Resolution of the photon scanning tunneling microscope: Influence of physical parameters. *Ultramicroscopy* **42** (1992) 422.
- [62] K. Karrai, R. D. Grober. Piezoelectric tip-sample distance control for near field optical microscopes. *Appl. Phys. Lett.* **66** (1995) 842.
- [63] H. Edwards, L. Taylor, W. Duncan, A. Melmed. Fast, high-resolution atomic force microscopy using a quartz tuning fork as actuator and sensor. *J. Appl. Phys.* **82** (1997) 980.
- [64] D. Tsai, Y. Lu. Tapping-mode tuning fork force sensing for near-field scanning optical microscopy. *Appl. Phys. Lett.* **73** (1998) 2724.
- [65] M. Gregor, P. Blome, J. Schöfer, R. Ulbrich. Probe-surface interaction in near-field optical microscopy: The nonlinear bending force mechanism. *Appl. Phys. Lett.* **68** (1996) 307.
- [66] S. McCulloch, D. Uttamachandi. A simple reproducible technique for producing sub-micrometre fibre-optic probes for near-field optical microscopy and chemical sensors. *Meas. Sci. Technol.* **6** (1995) 1157.

- [67] R. Gallachi, S. Kölsch, H. Kneppel, A. J. Meixner. Well-shaped fibre tips by pulling with a foil heater. *J. Microscopy* **202** (2001) 182.
- [68] P. Wang, Y. Lu, J. Zhang, H. Ming, J. Xie, C. Huang, T. Kao, D. Tsai. A tapping-mode tuning fork with a short fibre probe sensor for a near-field scanning optical microscope. *Chin. Phys. Lett.* **19** (2002) 1268.
- [69] M. Moers, R. Tack, O. Noordman, F. Segerink, N. van Hulst, B. Bölger. Combined photon scanning tunneling microscope and atomic force microscope using silicon nitride probes. In D. Pohl, D. Courjon, Herausgeber, *Near field optics* (1993) .
- [70] A. Meixner, M. Bopp, G. Tarrach. Direct measurement of standing evanescent waves with a photon-scanning tunneling microscope. *Appl. Opt.* **33** (1994) 7995.
- [71] J. Hahn, J. Petter, T. Tschudi. Messung der evaneszenten Felder wellenleitender Strukturen in Lithiumniobat. In *Proc. DGO* (2006) .
- [72] S. Tascu, P. Moretti, S. Kostitskii, B. Jacquier. Optical near-field measurements of guided modes in various processed LiNbO₃ and LiTaO₃ channel waveguides. *Opt. Mat.* **24** (2003) 297.
- [73] A. Campillo, J. Hsu, C. White, C. Jones. Direct measurement of the guided modes in LiNbO₃ waveguides. *Appl. Phys. Lett.* **80** (2002) 2239.
- [74] X. Fang, W. Tan. Imaging single fluorescent molecules at the interface of an optical fiber probe by evanescent wave excitation. *Anal. Chem.* **71** (1999) 3101.
- [75] R. Horvath, H. Pedersen, N. Skivesen, D. Selmeczi, N. Larsen. Monitoring of living cell attachment and spreading using reverse symmetry waveguide sensing. *Appl. Phys. Lett.* **86** (2005) 071101.
- [76] D. Axelrod. Cell-substrate contacts illuminated by total internal reflection fluorescence. *J. Cell. Biol.* **89** (1981) 141.
- [77] C. Zettner, M. Yoda. Particle velocity field measurements in a near-wall flow using evanescent wave illumination. *Experiments in Fluids* **34** (2003) 115.
- [78] A. Jablonski. Über den Mechanismus der Photolumineszenz von Farbstoffphosphoren. *Z. Phys.* **94** (1935) 38.

- [79] G. G. Stokes. On the change of refrangibility of light. *Phil. Trans. R. Soc.* **142** (1852) 463.
- [80] H. P. Lehr. *Entwicklung eines Fluoreszenz-optischen Evaneszenz-Feldmesssystems für die Echtzeitanalyse von DNA-Mikroarrays*. Dissertation, Universität Freiburg (2002).
- [81] R. Regener, W. Sohler. Loss in Low-Finesse Ti:LiNbO₃ Optical Waveguide Resonators. *Appl. Phys. B* **36** (1985) 143.
- [82] J. T. Kajiya, B. P. von Herzen. Ray Tracing Volume Densities. *Computer Graphics* **18** (1984) 165.
- [83] S. Chandrasekhar. *Radiative transfer*. Dover (1960).
- [84] C. D. Byrne, A. J. de Mello, W. L. Barnes. Variable-Angle Time-Resolved Evanescent Wave-Induced Fluorescence Spectroscopy (VATR-EWIFS): A Technique for Concentration Profiling Fluorophores at Dielectric Interfaces. *J. Phys. Chem. B* **102** (1998) 10326.
- [85] T. Ruckstuhl, D. Verdes. Supercritical angle fluorescence (SAF) microscopy. *Opt. Expr.* **12** (2004) 4246.
- [86] J. Hahn, J. Petter, T. Tschudi. Grenzflächenuntersuchungen an biologischen Proben mit einem optischen Nahfeldsensor. In *Proc. DGaO* (2007) .
- [87] E. Kaldis. *Current Topics in Material Science, Volume 1*. North Holland Publishing Company (1978).
- [88] K. K. Wong. *Properties of Lithium niobate*. Inspec, UK (2002).
- [89] T. K. G. R. S. Weis. Lithium Niobate: Summary of Physical Properties and Crystal Structure. *Appl. Phys. A* **37** (1985) 191.
- [90] D. Nelson, R. Mikulyak. Refractive indices of congruently melting lithium niobate. *J. Appl. Phys.* **45** (1974) 3688.
- [91] H. Du, R. A. Fuh, J. Li, A. Corkan, J. S. Lindsey. PhotochemCAD: A computer-aided design and research tool in photochemistry. *Photochem. Photobiol.* **68** (1998) 141.
- [92] A. Peng, D. Xiao, Y. Ma, W. Yang, J. Yao. Tunable Emission from doped 1,3,5-Triphenyl-2-pyrazoline organic nanoparticles. *Adv. Mater.* **17** (2005) 2070.

- [93] U. Brackmann. *Lambdachrome[®] Laser Dyes*. Lambda Physik GmbH (1994).
- [94] F. L. Arbeloa, P. R. Ojeda, I. L. Arbeloa. Fluorescence self-quenching of the molecular forms of rhodamine B in aqueous and ethanolic solutions. *J. Luminesc.* **44** (1989) 105.
- [95] J. M. Drake, M. L. Lesiecki, D. M. Camaioni. Photophysics and cis-trans isomerization of DCM. *Chem. Phys. Lett.* **113** (1985) 530.

Danksagung

An erster Stelle danke ich Prof. Theo Tschudi für die Aufnahme in die Arbeitsgruppe Licht- und Teilchenoptik und die Ermöglichung und Betreuung dieser Arbeit.

Ich danke Prof. Thomas Halfmann für die Übernahme des Korreferats.

Dr. Jürgen Petter danke ich für die Förderung und seine Unterstützung bei dieser Arbeit.

Bedanken möchte ich mich auch bei der gesamten AG Licht- und Teilchenoptik für die produktive Zusammenarbeit und das freundschaftliche Arbeitsklima. Namentlich erwähnen möchte ich an dieser Stelle meine Kollegen Christian Heinisch, Dr. Markus Tiemann, Dr. Jörn Peuser, Charlie Koch, Dr. Ralf Nicolaus und Dr. Sören Lichtenberg.

Ein ganz besonderer Dank in dieser Hinsicht gilt meinem Diplomanden Frank Fecher für seine engagierte Arbeit beim Aufbau des SNOMs und bei der Durchführung der SNOM-Messungen.

Ich danke Ellen Happel für ihre Unterstützung, sowie der feinmechanischen Werkstatt und Elektronikwerkstatt, besonders Wolfgang Rök.

Zum Gelingen dieser Arbeit trugen ebenfalls bei: Danke an Christian Rüter von der TU Clausthal für die Herstellung der Wellenleiterstrukturen und die Hilfe bei den Simulationen, Andreas Englisch und Stefan Griesing von der Universität Saarbrücken für die Durchführung der 2D-SNOM-Messungen, Tobias Richter von der AG Kaiser für weitere Hilfe bei den Simulationen sowie Jenny Hewing von der AG Thiel für die Präparation der biologischen Proben.

Weiterhin danke ich dem Graduiertenkolleg 1114 und der DFG für die Finanzierung der Arbeit.

Für die persönliche (und teilweise auch fachliche) Unterstützung während dieser Arbeit möchte ich mich herzlich bei meinen Freunden Kai Schorstein, Cornelia Lengler, Dr. Mike Kent, Nadja Diefenbach, Annika Brunkhardt und Patricia Suffner bedanken, die immer ein offenes Ohr für die Probleme eines Doktoranden hatten.

Mein größter Dank gilt meiner Familie, für einfach alles und insbesondere dafür, dass sie niemals Zweifel daran hatten, dass ich meine Ziele erreichen würde, egal, wie hoch ich sie mir selbst gesteckt hatte.

Lebenslauf

Persönliche Daten

Julia Désirée Hahn
geb. am 29.03.1980 in Frankfurt am Main

Eltern: Willi Ernst Hahn
Sylvia Hahn geb. Schneider

Schulausbildung

1986 - 1990	Selzerbachschule, Karben
1990 - 1999	Augustinerschule, Friedberg
06/1999	Abschluss: Abitur

Hochschulausbildung

10/1999 - 04/2005	Studium der Physik an der Technischen Universität Darmstadt
10/2001	Vordiplom
09/2002 - 07/2003	Studium der Physik an der Universidad de Salamanca, Spanien im Rahmen des Erasmus-Austauschprogrammes
04/2005	Abschluss: Diplom Diplomarbeit in der AG Prof. Tschudi: „Messung des Strahlungsdrucks von Licht mit einem adaptiven holographischen Interferometer“
05/2005 - 04/2008	Promotionsstudium an der Technischen Universität Darmstadt in der AG Prof. Tschudi, Stipendium des Graduiertenkollegs 1114: „Optische Messtechniken für die Charakterisierung von Transportprozessen an Grenzflächen“ der Deutschen Forschungsgemeinschaft

Berufstätigkeit

04/2001 - 07/2002	Betreuung des physikalischen Grundpraktikums an der
& 10/2003 - 07/2004	Technischen Universität Darmstadt als Studentische Hilfskraft
08/2003 - 09/2003	Praktikum / freie Mitarbeit am Lions Eye Institute in Perth, Australien

Publikationsliste

Veröffentlichungen im Rahmen der Dissertation

Veröffentlichungen in internationalen Fachzeitschriften

- J. Hahn, C. Rueter, F. Fecher, J. Petter, D. Kip, T. Tschudi, *Measurement of the enhanced evanescent fields of integrated waveguides for optical near-field sensing*, Appl. Opt. **47**, 16, p. 2357-2360 (2008)

Veröffentlichte Tagungsbeiträge

- J. Hahn, F. Fecher, J. Petter, T. Tschudi, *Sensitivity enhancement of integrated optical near-field sensors*, Proceedings SPIE **6995**, p. 699509 (2008)
- J. Hahn, J. Petter, T. Tschudi, *Grenzflächenuntersuchungen an biologischen Proben mit einem optischen Nahfeldsensor*, Proceedings der 108. Jahrestagung der DGaO, ISSN: 1614-8436 (2007)
- J. Hahn, J. Petter, T. Tschudi, *Messung der evaneszenten Felder wellenleitender Strukturen in Lithiumniobat*, Proceedings der 107. Jahrestagung der DGaO, ISSN: 1614-8436 (2006)

Weitere Tagungsbeiträge

- J. Hahn, F. Fecher, J. Petter, T. Tschudi, *Charakterisierung der Erhöhung der evaneszenten Feldintensität integriert-optischer Nahfeldsensoren*, Frühjahrstagung der DPG, Darmstadt (2008)
- F. Fecher, J. Hahn, J. Petter, T. Tschudi, *Aufbau eines optischen Rasternahfeldmikroskops (SNOM) zur Untersuchung evaneszenter Felder*, Frühjahrstagung der DPG, Düsseldorf (2007)
- J. Hahn, J. Petter, T. Tschudi, *Waveguiding structures in Lithium niobate (LiNbO_3)*, Winter College on Fibre Optics, Fibre Lasers and Sensors, Triest, Italien (2007)

Betreute Diplomarbeiten

- F. Fecher, *Aufbau eines optischen Rasternahfeldmikroskops (SNOM) zur Untersuchung evaneszenter Felder* (2007)

Weitere Veröffentlichungen

Veröffentlichungen in internationalen Fachzeitschriften

- V.M. Petrov, J. Hahn, J. Petter, M.P. Petrov, T. Tschudi, *Precise sub-nanometer control of the position of a macro-object by light pressure*, Opt. Lett. **30**, 23, p. 3138-3140 (2005)

Veröffentlichte Tagungsbeiträge

- T. Tschudi, V. Petrov, J. Petter, S. Lichtenberg, C. Heinisch, J. Hahn, *An adaptive holographic interferometer for high precision measurements* in: W. Osten (Ed) Fringe 2005, Springer Verlag, Berlin (2005) ISBN 3-540-26037-4
- J. Hahn, V.M. Petrov, J. Petter, M.P. Petrov, T. Tschudi, *Measurement of light pressure from UV to IR using a dynamic holographic interferometer*, OSA Trends in Optics and Photonics (TOPS) **99**, p. 669-674 (2005)
- J. Hahn, V.M. Petrov, J. Petter, M.P. Petrov, T. Tschudi, *Measuring the pressure of light with an adaptive holographic interferometer*, Proceedings der 106. Jahrestagung der DGaO, ISSN: 1614-8436 (2005)
- V.M. Petrov, J. Hahn, S. Lichtenberg, J. Petter, T. Tschudi, *Adaptives holographisches Interferometer basierend auf dynamischen Reflektionshologrammen in Sillenit - Kristallen*, Proceedings der 105. Jahrestagung der DGaO, ISSN: 1614-8436 (2004)

Weitere Tagungsbeiträge

- T. Tschudi, V.M. Petrov, J. Petter, S. Lichtenberg, C. Heinisch, J. Hahn, *An adaptive holographic interferometer for high precision measurements*, ICO 20, Changchun, China (2005)
- J. Hahn, V.M. Petrov, J. Petter, M.P. Petrov, T. Tschudi *Measurements of light pressure from UV to IR using a dynamic holographic interferometer*, Photorefractives 05, Sanya, Hainan, China (2005)
- V.M. Petrov, J. Hahn, J. Petter, M.P. Petrov, T. Tschudi, *Measurements of light pressure in UV-IR band using an adaptive holographic interferometer*, CLEO Europe, München (2005)

- V.M. Petrov, J. Hahn, J. Petter, M.P. Petrov, T. Tschudi, *Measurements of light pressure using a dynamic holographic interferometer*, ICONO / LAT, St. Petersburg, Russland (2005)
- J. Hahn, V.M. Petrov, J. Petter, T. Tschudi, *Direkte Messung von Lichtdruck mit einem adaptiven Interferometer*, Frühjahrstagung der DPG, Berlin (2005)

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die hier vorliegende Dissertation selbstständig verfasst habe. Ich habe dazu keine weiteren als die angeführten Hilfsmittel benutzt und die aus anderen Quellen entnommenen Stellen als solche gekennzeichnet.

Ich versichere weiterhin, dass ich bisher noch keinen Versuch zur Promotion unternommen habe.

Darmstadt, den 23. Mai 2008

(Julia Hahn)